Tome 20 N° 7 Juillet 1959

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

ÉTUDE DE LA DIFFUSION MULTIPLE COHÉRENTE DE LA LUMIÈRE DE RÉSONANCE OPTIQUE. APPLICATION AU NIVEAU 6 $^3P_1$ DU MERCURE.

III. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.

Par J. P. BARRAT,
Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure.

Résumé. — Les résultats de la théorie développée dans deux publications précédentes ont été vérifiés expérimentalement dans le cas de la diffusion multiple des photons de la raie 2 537 Å (6 $^1S_0$ — 6 $^3P_1$) par les atomes de mercure. En particulier, le taux de polarisation de la lumière de résonance optique et la durée de vie apparente ou durée de cohérence du niveau 6 $^3P_1$ ont été mesurés, dans le cas de l'excitation sélective d'un isotope pair ou de l'un des niveaux hyperfins des isotopes impairs, en fonction du nombre d'atomes par cm³ diffusant le rayonnement, pour des conditions géométriques déterminées. L'influence des conditions géométriques a été également étudiée, ainsi que la largeur et la forme des raies de résonance magnétique dans le cas de la diffusion double. Les résultats expérimentaux sont en général en bon accord avec les prévisions théoriques.

Abstract. — The results of the theory developed in two preceeding papers have been checked experimentally, in the case of multiple scattering of 2 537 optical resonance radiation (6 $^1S_0$—6 $^3P_1$) by mercury atoms. In particular the degree of polarization of the resonance light and the apparent lifetime ("coherence time") of the 6 $^3P_1$ level have been measured, in the case of selective excitation of an even isotope, or of one of the hyperfine levels of the odd isotopes, as functions of the number of atoms per c.c. which effectively scatter the radiation, for fixed geometrical conditions. Effects due to variation of geometrical conditions have also been studied, as well as the width and the shape of the magnetic resonance lines in the case of double scattering. Experimental results are generally in good agreement with theoretical expectations.

Dans les 2 premières parties [1, 2] désignées dans la suite par I et II, nous avons développé une étude théorique des effets de la diffusion multiple des photons de résonance optique. Des résultats expérimentaux partiels concernant la raie 6 $^1S_0$ — 6 $^3P_1$ (2 537 Å) des différents isotopes du mercure, ont déjà été publiés [3, 4, 5, 6, 7, 8, 9]. Le lecteur trouvera en particulier dans les références [4] et [9] un historique de la question et la description qualitative des effets observés, avec les arguments qui ont permis de les attribuer à la diffusion multiple cohérente des photons. Ce chapitre est destiné à récapituler les faits expérimentaux en les comparant aux prévisions de la théorie établie dans I et II.

1. Conditions des expériences dans le cas du mercure. — La structure hyperfine pour les isotopes impairs à spin nucléaire ^{199}Hg et ^{201}Hg, et le déplacement isotopique des composantes dues aux isotopes pairs de la raie 6 $^1S_0$ — 6 $^3P_1$, sont tous deux grands devant la largeur Doppler de chaque composante [10]. Par suite, conformément aux hypothèses faites dans les calculs de I et II, la diffusion multiple se produit indépendamment pour chaque composante de la raie [4, 9]. On peut aussi profiter de certaines coïncidences accidentelles entre une composante d'un isotope pair et une composante hyperfine d'un isotope impair pour exciter sélectivement un niveau hyperfin d'un isotope impair, grâce à l'emploi de mélanges isotopiques enrichis en l'un ou l'autre des divers isotopes. Les expériences ont porté :

a) sur les formes et les largeurs des raies de résonance magnétique, dans le cas des isotopes pairs (paragr. 2, 4, 5, 6) et de certains niveaux hyperfins des isotopes impairs (paragr. 7, 8, 9) ;

b) sur la mesure des taux de polarisation P_σ et P_π

de la lumière de résonance optique réémise à angle droit du champ magnétique statique H_0, en excitation σ et π respectivement, dans le cas des isotopes pairs (paragr. 2) ;

c) sur la mesure de la durée de vie apparente du niveau $6\,^3P_1$ par la méthode de dépolarisation magnétique due à Hanle [11] dans le cas des isotopes pairs (paragr. 3) et de l'isotope ^{201}Hg (paragr. 10).

Le dispositif expérimental comportait essentiellement une cellule en quartz dont le queusot, contenant la goutte de mercure, doit être soigneusement

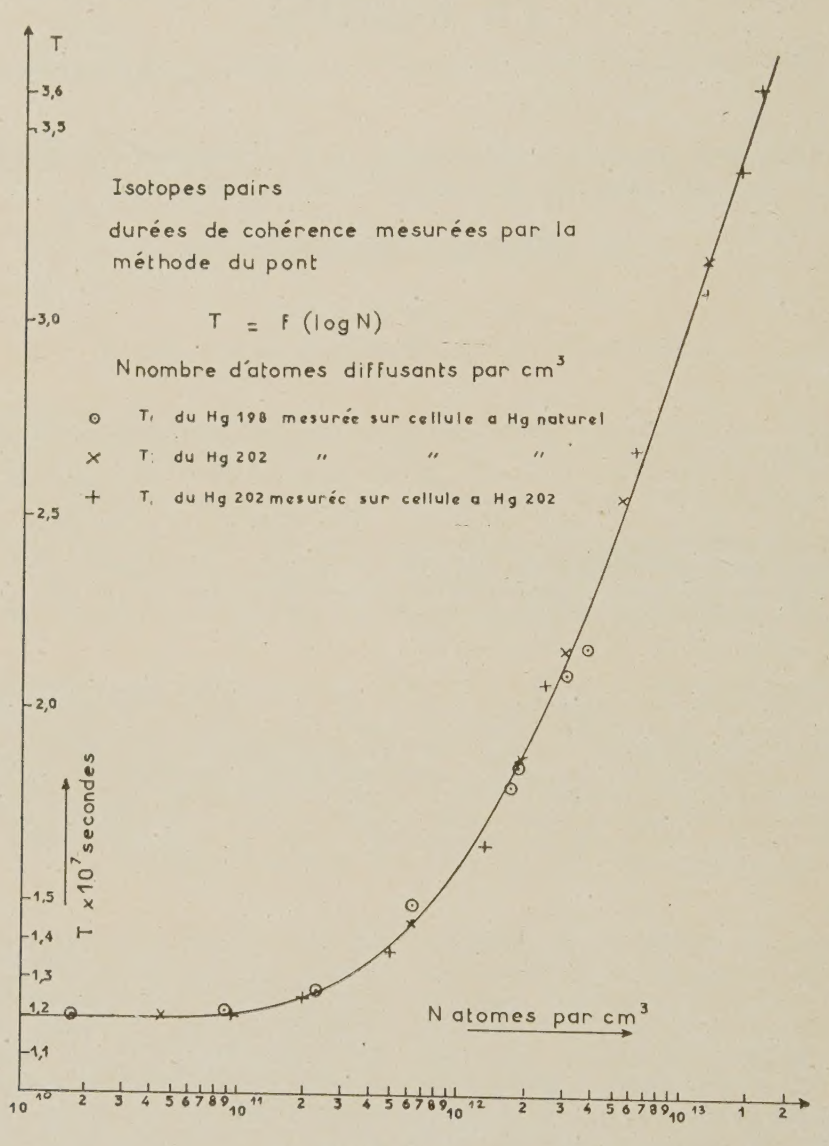


Fig. III,1.

thermostaté. L'excitation optique était fournie soit par un arc basse pression alimenté en courant alternatif, soit par des lampes excitées par une décharge haute fréquence et contenant des mélanges isotopiques enrichis en un isotope de mercure. Les champs magnétiques utilisés étaient fournis par une paire de bobines en position d'Helmholtz. Un émetteur à quartz suivi d'un amplificateur débitant dans un circuit accordé fournissait le champ H. F. H_1 que l'on mesurait en valeur relative. Des photomultiplicateurs recevaient les signaux de résonance optique. Le signal de résonance magnétique était étudié en général au moyen de la déviation d'un galvanomètre. Toutefois, dans certaines mesures, nous avons utilisé un dispositif électronique de modulation de la puissance de haute fréquence, et d'amplification sélective avec détection synchrone du signal de résonance magnétique. Les différentes parties de l'appareillage sont semblables à celles des appareillages utilisés par Brossel et Blamont et ont déjà été décrites [4, 5, 9, 12].

2. Résonance magnétique et taux de polarisation dans le cas de l'excitation sélective d'un isotope pair [4, 5, 8, 9]. — Dans le domaine de pression de vapeur qui correspond à un nombre N d'atomes

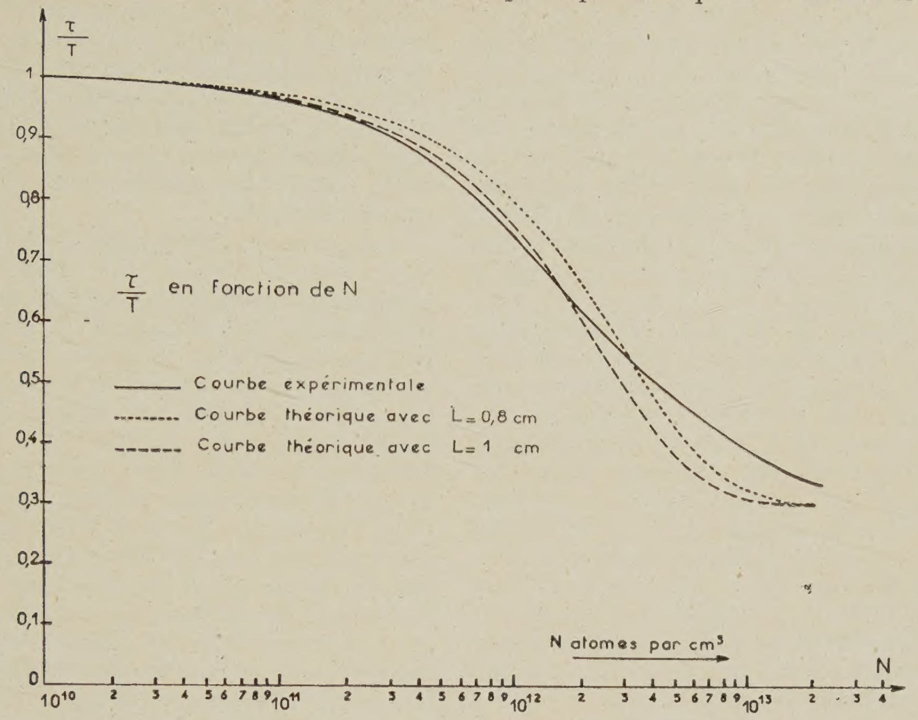


FIG. III,2.

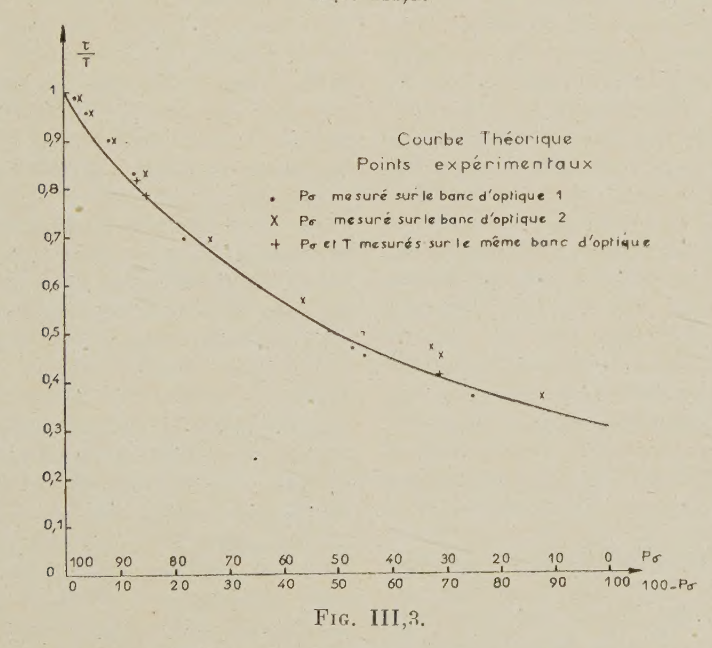


FIG. III,3.

diffusants par cm³ compris entre 10^{10} et 2.10^{13} (1), les raies de résonance magnétique obtenues par excitation sélective d'un isotope pair dans un mélange isotopique quelconque ont la forme dite de Majorana-Brossel (formule II,27), ce qui est en accord avec les prévisions théoriques, et ceci à toutes les fréquences qui aient été utilisées. Plusieurs réseaux complets de courbes de résonance ont été tracés et comparés à des réseaux théoriques, la fréquence choisie étant 144 MHz. L'accord est excellent. Dans des conditions de géométrie iden-

(1) Ces mesures ont été effectuées par Mlles M. A. Guiochon et F. Boutron et ont constitué une partie de leurs Diplômes d'Études Supérieures [4, 5].

tiques, la largeur des courbes en niveau de radiofréquence nul permet de déterminer un paramètre T, durée de vie apparente du niveau ou « durée de cohérence » qui est une fonction seulement de N, indépendamment de la présence des autres isotopes. La courbe donnant T en fonction de N (*fig. III*,1) comporte des points obtenus en excitant soit les isotopes ^{202}Hg et ^{198}Hg dans du mercure naturel, soit l'isotope ^{202}Hg dans une cellule contenant ce dernier presque pur. Ce résultat a été l'un des premiers arguments donnés en faveur de l'interprétation de l'affinement des raies par la diffusion multiple [4, 5].

La valeur limite de T pour N très faible, $1,18.10^{-7}$ sec, est à interpréter comme la durée de vie vraie τ du niveau $6\,^3P_1$ pour un atome isolé.

Pour comparer de façon plus précise les prévisions théoriques et les résultats, il est intéressant de tenter de déterminer le paramètre x en fonction de N, ce qui nécessite la fixation de la limite supérieure L (cf. II, paragr. 1, D). Les cellules utilisées étant des cubes de 2,5 cm d'arête environ, le calcul de x, puis de τ/T en fonction de N a été fait pour $L = 1$ cm ou $L = 0,8$ cm (cf. *fig. III*, 2). Les résultats encadrent les valeurs expérimentales et ne s'en écartent pas de plus de 20 %. L'accord nous semble satisfaisant étant donné les approximations faites dans la définition même de x et L.

Dans les conditions de nos mesures, les taux de polarisation P_σ et P_π sont aussi des fonctions bien déterminées de N. Il est remarquable toutefois que P_σ et P_π ne semblent pas atteindre leur limite théorique 100 aux très faibles valeurs de N. L'explication de ce phénomène n'a pas été trouvée de façon sûre. Il est dû peut-être au défaut de parallélisme des faisceaux lumineux, ou à la dépolarisation de la lumière par la traversée des fenêtres de la cellule ou par des réflexions et diffusions sur ces fenêtres. S'il s'agit d'un effet de dépolarisation par traversée de dioptres, les valeurs correctes doivent s'obtenir en effectuant sur les valeurs limites une affinité ramenant à 100 la limite pour N très faible. Ce sont *ces valeurs ainsi corrigées* qui sont comparées plus loin aux valeurs théoriques.

Étant donné les approximations faites dans la définition même du paramètre x, on peut penser que les faibles désaccords entre les résultats théoriques et expérimentaux (cf. *fig. III*, 2) seront moins importants si on élimine x entre les diverses formules démontrées en II et que l'on essaie de comparer la relation théorique obtenue aux valeurs expérimentales. La courbe de la figure III,3 donne les valeurs théoriques de τ/T en fonction de P_σ, les points représentant le résultat des mesures ; à une valeur de τ/T déterminée à partir du montage en pont utilisant 2 bancs d'optique (cf. références 4, 5, 9, 12) sont associées 2 valeurs de P_σ mesurées à la même valeur de N sur chacun des 2 bancs d'optique. D'où 2 séries de points expérimentaux. La différence entre ces 2 valeurs de P_σ résulte assurément du fait qu'ils ne visaient pas la même région de la cellule (influence de la géométrie ; cf. paragr. 4) ; on conçoit que les 2 séries de points expérimentaux encadrent presque partout la courbe théorique. Lorsque T a été mesuré en n'utilisant qu'un seul banc d'optique, le point représentant la valeur de τ/T obtenue et la valeur de P_σ correspondante est beaucoup plus près de la courbe théorique.

Aux pressions de vapeur plus élevées, les mesures devenaient beaucoup plus difficiles : le taux de polarisation devient en effet très faible et le signal de résonance magnétique n'est plus qu'une faible fraction du signal de résonance optique ; le rapport signal sur bruit devient très médiocre et il est nécessaire d'utiliser un dispositif électronique. Seules des mesures de T ont été effectuées, à la fréquence de 14,48 MHz, les mesures de P_σ étant trop imprécises. Nous n'avons opéré que sur une cellule contenant l'isotope ^{202}Hg presque pur ; la précision des mesures était très médiocre, il est difficile de décider si les désaccords observés entre les réseaux de courbes de résonance expérimentales et la formule II,27 de Majorana-Brossel étaient réels ou seulement dus aux erreurs accidentelles. En tout cas, la largeur limite permettait de déduire une valeur de T et de τ/T. Les quelques mesures faites ont montré que T ne dépassait pas la valeur maximum $(10/3)\,\tau$ donnée par la théorie. Pour $N > 3.10^{13}$, T décroît très rapidement quand N croît, c'est-à-dire que les raies s'élargissent. Nous n'avons pas cherché à étudier en détail ce phénomène. Il est possible que l'effet soit dû encore à la diffusion multiple ; la validité des approximations faites dans la théorie de l'effet est beaucoup moins sûre dans cette zone de pressions de vapeur (en particulier R n'est plus très supérieur à Λ). Si au contraire on attribue cet effet à des collisions entre atomes excités et atomes dans l'état fondamental, on peut admettre en première approximation que la largeur limite est la somme des largeurs $(3/10)\,(1/\tau)$ due à la diffusion multiple et $1/\tau_c$ due aux collisions, (τ_c était le temps moyen entre collisions). De τ_c on peut déduire le libre parcours moyen et la section efficace σ^2 que l'on trouve de l'ordre de 8.10^{-13} cm^2. Cette valeur est 8 fois plus grande que celle donnée par Holstein pour les collisions ^{198}Hg — ^{199}Hg [13]. Cet ordre de grandeur semble donc raisonnable. Des investigations ultérieures dans ce domaine de pressions de vapeur seraient souhaitables ; en particulier des mesures faites en excitant ^{202}Hg dans le mercure naturel permettraient d'étudier le rôle des collisions entre isotopes différents.

3. **Résonance magnétique et dépolarisation magnétique dans le cas des isotopes pairs [6, 8, 9].** — En utilisant 2 cellules identiques, les mêmes que

dans les expériences décrites ci-dessus, contenant l'une du mercure naturel et l'autre un mélange enrichi en ^{202}Hg, nous avons effectué des mesures comparées de T en fonction de N par les 2 méthodes de résonance magnétique et de dépolarisation magnétique (cf. II, paragr. 3). Le taux de polarisation P en fonction du champ H_0 satisfait bien aux diverses valeurs de N à une loi du type

$$P = \frac{P_0}{1 + 4\omega_0^2 T^2} \quad \text{(III,1)} \quad \text{avec} \quad \omega_0 = \gamma H_0.$$

Les mesures de T par la résonance magnétique ont été effectuées à la fréquence de 144 MHz. (Les conditions géométriques étaient aussi voisines que possibles, dans les 2 types de mesures, de celles des expériences décrites au paragr. 2.) La figure III,4 représente en fonction de N les diverses valeurs de T obtenues. Tous les points se groupent bien autour d'une même courbe, conformément au résultat théorique (d'après lequel les 2 méthodes doivent fournir la même valeur de T). L'accord entre la théorie et l'expérience est ici excellent. Notons toutefois les points de désaccord suivant :

a) P_0, valeur en P en champ H_0 nul, est calculable théoriquement à partir de x, lui-même déterminé par le rapport τ/T ; or là encore, les valeurs

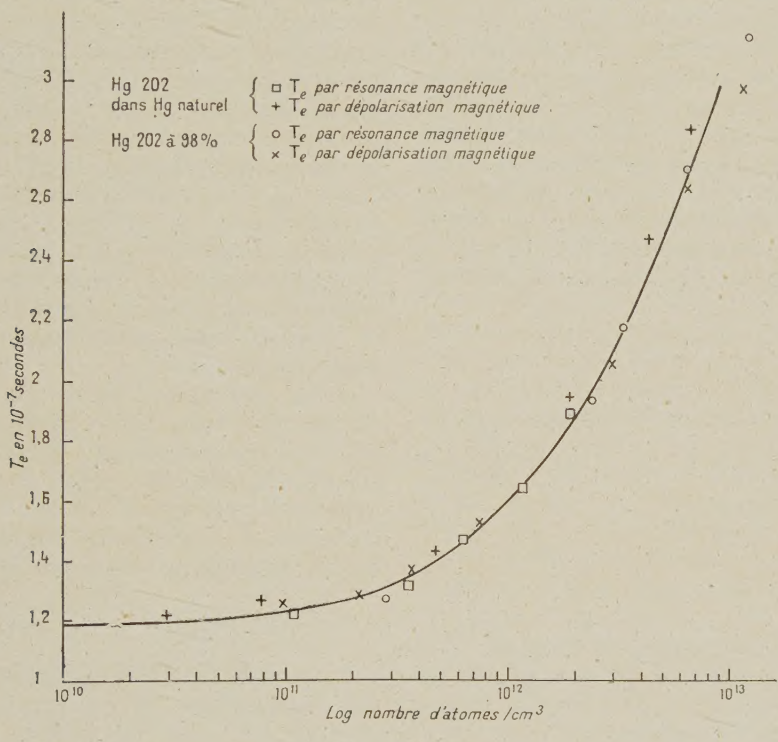


Fig. III,4.

expérimentales sont plus faibles que les valeurs théoriques et ne tendent pas vers 100 pour N très faible ; en outre il est ici impossible de concilier les résultats théoriques et expérimentaux en faisant subir à ces derniers une correction analogue à celle du paragr. 2 (multiplication par un facteur constant). La raison de ce désaccord n'est pas comprise. Par contre, conformément aux prévisions, P_π et P_0 ont la même valeur pour une valeur de N donnée.

b) A forte concentration ($N = 2.10^{13}$ atomes/cm³), la résonance magnétique donne $T = 3{,}40.10^{-7}$ sec et la dépolarisation magnétique $T < 3.10^{-7}$ sec. Il est difficile de préciser s'il s'agit d'un désaccord réel ou si les mesures dans cette zone de pressions sont fortement erronées (P_0 étant faible, les mesures de T par mesure de P sont peu sûres). C'est pourquoi les mesures n'ont pas été poursuivies aux pressions de vapeur plus élevées.

4) **Étude d'effets dépendant de la géométrie.** — Quelques effets dépendant de la géométrie du montage ont été étudiés en utilisant une cellule de dimensions plus grandes que les cellules usuelles (cube de 4,2 cm d'arête) contenant du mercure naturel dans lequel on excitait sélectivement l'isotope ^{202}Hg). Au lieu d'utiliser un faisceau d'excitation parallèle, on formait l'image de la lampe à l'intérieur de la cellule, soit au niveau des diaphragmes de détection (position I de la lampe), soit dans une autre région bien déterminée de la cellule (position II de la lampe) de telle sorte que le fais-

ceau excitateur ne passe pas au niveau de ces diaphragmes. En principe, lorsque la lampe était en position II, les photomultiplicateurs n'auraient pas dû recevoir de photons résultant d'un phénomène de résonance optique simple (diffusion simple), mais uniquement des photons ayant été diffusés 2 fois au moins. En pratique, il y a toujours réflexion et diffusion par les parois de la cellule de la lumière incidente et de la lumière de résonance optique simple ; celle-ci arrivait donc malgré tout aux photomultiplicateurs, mais son intensité était considérablement réduite. Grossièrement, on pouvait prévoir des raies de résonance magnétique résultant de la différence de 2 raies de Majorana-Brossel, l'une correspondant à la superposition de tous les ordres de diffusion multiple, l'autre (avec la largeur naturelle $1/\tau$) à la diffusion simple, dont les amplitudes relatives étaient *a priori* inconnues. Dans ces conditions, aucune vérification quantitative de la forme de raie n'a été entreprise. Nous nous sommes contentés de mesurer en fonction de N les largeurs limites pour H_1 nul des réseaux obtenus avec la lampe en position I et II ; on en déduisait des paramètres T_{I} et T_{II} et on constate

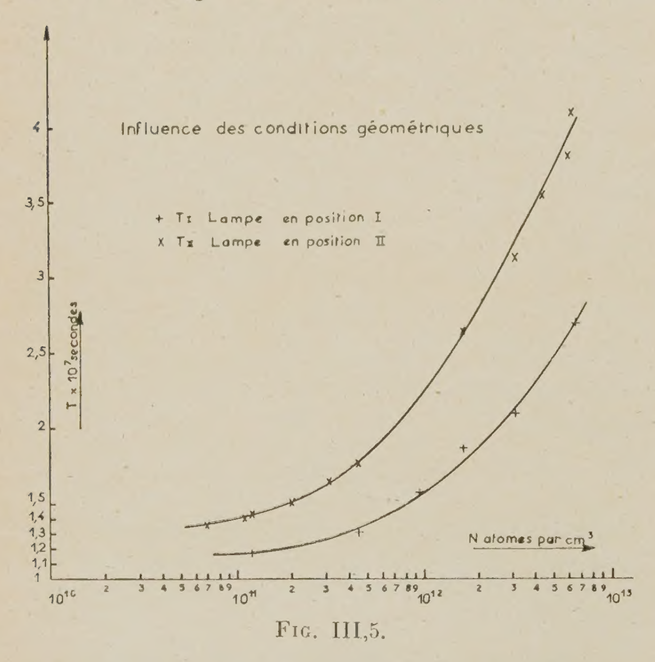


Fig. III,5.

que $T_{\text{II}} > T_{\text{I}}$ à la même valeur de N (*fig. III*,5). En outre, les réseaux de type II ne peuvent absolument pas être représentés par une formule de Majorana-Brossel. Ces résultats sont qualitativement conformes aux prévisions ; il semble impossible de comprendre autrement que par la diffusion multiple (par exemple par l'intervention de collisions) ces effets qui dépendent uniquement de la géométrie du montage.

5. **Expériences de diffusion double [7, 8, 9].** — Pour confirmer de façon particulièrement frappante l'interprétation donnée, nous avons étudié les formes des raies de résonance magnétique dans le cas où tous les photons de résonance optique ont été diffusés 2 fois par les atomes soumis à la résonance magnétique. Dans cette expérience nous utilisons 2 cellules cubiques de 2,4 cm d'arête, juxtaposées ; la droite joignant leurs centres est perpendiculaire au champ magnétique statique H_0. Les cellules sont remplies de mercure naturel dans lequel on excite l'isotope ^{202}Hg. Des diaphragmes permettent de n'exciter optiquement que la cellule I, mais de n'observer que la lumière de résonance optique réémise par la cellule II. La pression de vapeur est telle dans chaque cellule que la diffusion multiple y est négligeable devant la diffusion simple (température du queusot inférieure à — 20 °C, c'est-à-dire $N < 2.10^{11}$ atomes par cm³). Ainsi les photons observés issus de la cellule II illuminée par la résonance optique de la cellule I ont été diffusés 2 fois et 2 fois seulement. En condensant dans l'azote liquide le mercure d'une seule cellule, on constate toutefois que le signal ne s'annule pas complètement, en raison de diffusions et de réflexions parasites ; le signal résiduel est très faible et constitue une petite correction aux résultats bruts des mesures

Ainsi que nous l'avons vu (cf. II, paragr. 3, Remarque), si la droite joignant les 2 atomes qui diffusent successivement le même photon a une répartition isotrope dans l'espace (c'est pratiquement le cas pour 2 cellules très voisines) la contribution de la diffusion double à la raie de résonance magnétique est proportionnelle à (II,26)

$$B^{(2)}(\Omega, \gamma H_1, \tau) = \frac{\partial}{\partial \tau}[\tau B(\Omega, \gamma H_1, \tau)]. \quad \text{(III,2)}$$

La largeur limite des courbes théoriques pour H_1 nul correspond à une valeur $T_2 = 1{,}47\,\tau = 1{,}74.10^{-7}$ sec. La largeur ΔH est donnée en fonction de H_1 par :

$$\Delta H^2 = 0{,}46 \times \frac{4}{\gamma^2 \tau^2}[1 + 11{,}77\,(\gamma H_1 \tau)^2]. \quad \text{(III,3)}$$

D'autre part, l'amplitude à la résonance est

$$B^{(2)}(0, \gamma H_1, \tau) = B^{(2)}(0) = \frac{K\,\rho^2(4\rho^2 + 3)}{(4\rho^2 + 1)^2}. \text{(III,4)}$$

Elle présente un maximum quand H_1 croît, puis tend vers sa limite en décroissant ; la courbe $y^{(2)} = \dfrac{H_1^2}{B^{(2)}(0)}$ en fonction de H_1^2 a l'allure d'une parabole.

Nous avons tracé 5 réseaux expérimentaux de courbes de résonance en diffusion double. Les valeurs obtenues pour $T_2 \times 10^7$ ont été :

1,69 ; 1,70 ; 1,71 ; 1,77 ; 1,73 secondes.

Sur la figure (III,6), les courbes d'un réseau

théorique sont comparées aux points expérimentaux ; H_1 étant mesuré en valeur relative, 2 paramètres seulement sont nécessaires pour ajuster le réseau théorique au réseau expérimental (la valeur absolue de H_1 pour une courbe et un facteur multiplicatif d'ensemble). L'accord est bon et les faibles désaccords peuvent être attribués au caractère non parfaitement isotrope de la diffusion double dans notre expérience. La diminution de $B_2(0)$ quand H_1 devient très grand a été également observée. Ainsi les courbes ne peuvent absolument pas être représentées par la formule de Majorana-Brossel, mais sont bien représentées par la formule (III,2).

FIG. III,6.

L'importance de la cohérence de phase sur la forme des raies se manifeste également si l'on interpose une lame de quartz cristallin entre les 2 cellules. Les rayonnements π et σ émis par la cellule I sont perturbés (en différence de phase et dans leur état de polarisation) de façon différente avant d'exciter les atomes de la cellule II. Les formes des raies de résonance magnétique sont considérablement modifiées. Il est nécessaire pour introduire la lame d'écarter légèrement les 2 cellules. Le champ magnétique est alors insuffisamment uniforme sur le volume qu'elles occupent et les raies peuvent devenir nettement dissymétriques. Les expériences ne peuvent être que qualitatives et nous avons opéré avec les 2 gouttes de mercure à 0 °C. Le signal est ainsi rendu plus grand, mais la diffusion multiple est très appréciable dans chaque cellule.

6. **Résonance magnétique de l'ensemble des isotopes pairs dans le mercure naturel.** — Les premières expériences de Brossel [12] puis de Blamont [4] portaient sur la résonance magnétique des isotopes pairs dans le mercure naturel, l'excitation optique venant d'une source à mercure naturel (arc Gallois) se rapprochant des conditions d'émission « broad line » ou « narrow line » selon les cas. Or nous savons maintenant que l'excitation sélective d'un isotope pair dans un mélange isotopique donne des courbes de résonance magnétique ayant la forme de Majorana-Brossel et que chaque isotope se comporte dans le mélange comme s'il était seul. Les courbes observées par Brossel et Blamont ne peuvent donc être que la superposition par addition des courbes correspondant à l'excitation sélective de chaque isotope ; le réseau observé doit être la superposition par addition d'autant de réseaux qu'il y a d'isotopes pairs avec des valeurs de T différentes. Or Brossel et Blamont avaient trouvé des réseaux de courbes en excellent accord avec la forme théorique de Majorana-Brossel. Ce résultat doit être considéré comme une coïncidence ; il doit être en effet très difficile, pratiquement impossible, de distinguer entre un véritable réseau de Majorana-Brossel et un réseau résultant de la superposition par addition de plusieurs autres ayant des largeurs limites assez voisines. Cette interprétation a été vérifiée par M. A. Guiochon [4, 9]. Nous renvoyons, pour le détail de la vérification, aux publications précédentes. L'accord entre les prévisions et les résultats expérimentaux est excellent.

7. **Résonance magnétique sur le niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{199}Hg** (1). — Le spin nucléaire de l'isotope ^{199}Hg est $I = 1/2$. Le niveau $6\,^3P_1$ est décomposé en 2 niveaux hyperfins, avec les nombres quantiques $F = 1/2$ et $F = 3/2$; la structure hyperfine est $\eta \simeq 22\,000$ MHz. En champ magnétique faible et en excitation lumineuse σ la résonance magnétique n'est observable que sur le niveau $F = 3/2$; le calcul des effets de la diffusion multiple n'a été fait que dans le cas des champs très faibles, lorsque la largeur naturelle des sous-niveaux Zeeman est grande devant les écarts à l'équidistance dus au découplage $\boldsymbol{I}.\boldsymbol{J}$. Les distances des sous-niveaux $F = 3/2$ sont données par les formules valables au 2e ordre près en ν'/η :

$$\left\{\begin{array}{l} \nu\left(\pm\frac{3}{2} \rightleftarrows \pm\frac{1}{2}\right) \simeq \nu'\left(1 \mp \frac{1}{2}\frac{\nu'}{\eta}\right) \\ \nu\left(-\frac{1}{2} \rightleftarrows +\frac{1}{2}\right) \simeq \nu'. \end{array}\right. \qquad (III,5)$$

(1) Les mesures ont été effectuées par Mlle F. Boutron [5].

où $\nu' = \frac{eH_0}{4\pi mc}$ (III,6), fréquence de Larmor dans le champ H_0. La distance des résonances extrêmes $\delta\nu = \nu'^2/\eta$ à la fréquence de 14,48 MHz choisie est 9,6 kHz, soit 7.10^{-3} de la largeur naturelle de la raie. Les effets de l'écartement des résonances sont du second ordre en $\pi T \delta\nu$, lui-même de l'ordre de 5.10^{-3}, et peuvent être alors négligés.

Mais à cette fréquence, la distance des raies des isotopes pairs et du niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{199}Hg est de l'ordre de leurs largeurs. Dans les conditions d'excitation optique utilisées (mélange enrichi en ^{199}Hg, excité par une lampe contenant ce mélange, en présence de filtres contenant des mélanges enrichis en ^{199}Hg, ^{200}Hg et ^{201}Hg), l'intensité de la raie des isotopes pairs restait de l'ordre

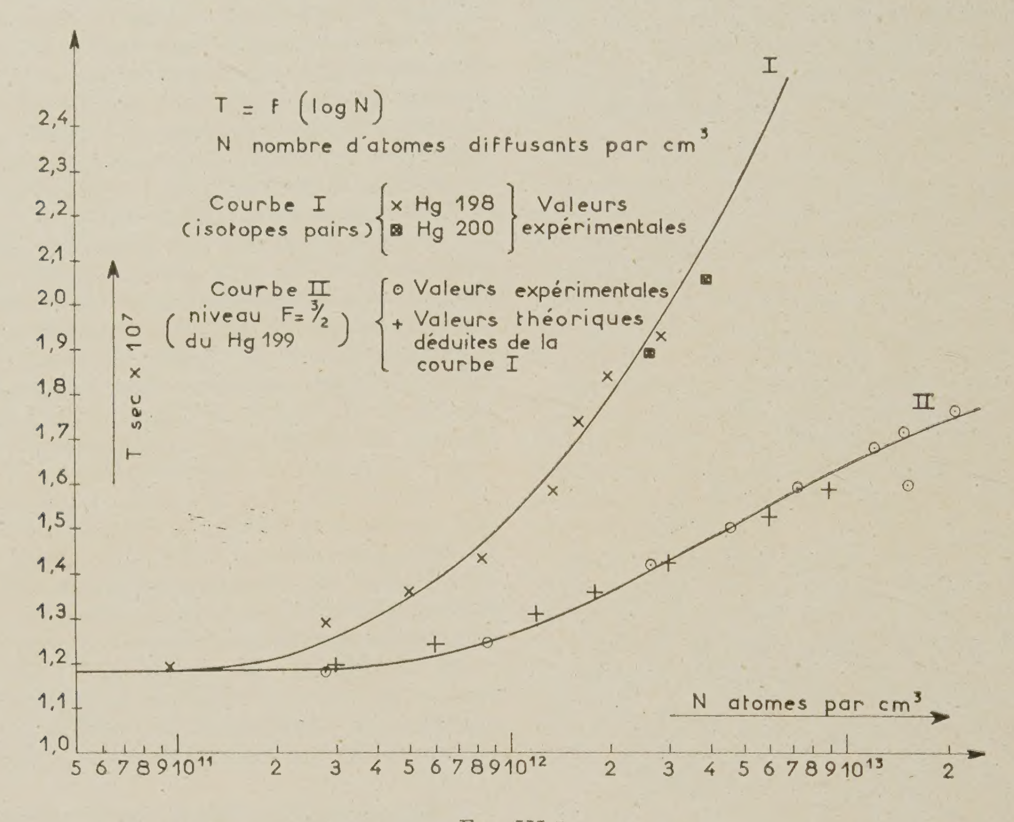


Fig. III,7.

de 1/10 de celle du ^{199}Hg, et rendait celle-ci dissymétrique. Une correction était nécessaire dont le détail est donné dans les références 5 et 9.

Les mesures de résonance magnétique étaient en général difficiles. Le rapport signal sur bruit, de l'ordre de 40 aux basses pressions de vapeur, diminuait jusqu'à 4 ou 3 aux pressions les plus élevées atteintes (pour lesquelles $N \simeq 2.10^{13}$). Cette diminution est liée à celles du taux de polarisation et du rapport de la résonance magnétique au signal de résonance optique. Dans la limite des erreurs, les réseaux de courbes de résonance expérimentales satisfont bien à une loi de Majorana-Brossel. Nous estimons que la précision des mesures de T reste de l'ordre de 3 à 4 %, sauf aux pressions de vapeur les plus élevées où elle est assurément moins bonne.

La valeur limite de $T_{I=1/2,\ F=3/2}$ pour N très faible est bien la même ($\tau = 1{,}18.10^{-7}$ sec) que dans le cas des isotopes pairs, considérée comme la durée de vie vraie du niveau $6\ ^3P_1$. La courbe donnant $T_{I=0,\ F=1}$ en fonction de N (dans le cas des isotopes pairs) avec les conditions géométriques de ce montage a été également tracée (par excitation sélective de ^{198}Hg ou ^{200}Hg dans le mélange). Des valeurs expérimentales de $T_{I=0,\ F=1}$ et des formules du tableau 1 donné dans II se déduisent les valeurs attendues pour $T_{I=1/2,\ F=3/2}$.

$$T_{I=1/2,F=3/2}(N) = \frac{2\tau\, T_{I=0,F=1}(2N/3)}{\tau + T_{I=0,F=1}(2N/3)}. \quad \text{(III,7)}$$

La figure III,7 permet de les comparer aux valeurs expérimentales. L'accord est satisfaisant.

Nous avons mesuré également le taux de polarisation P_σ de la lumière de résonance optique. En supposant que l'excitation lumineuse a la même intensité sur les 2 composantes hyperfines de la raie du ^{199}Hg (excitation de type « broad line »), on peut calculer à partir des valeurs expérimen-

tales de $T_{I=0,\,F=1}$ les valeurs attendues pour P_σ (cf. II, tableau 2) ; l'accord est encore suffisamment bon, étant donné l'imprécision des mesures et les approximations faites.

8) **Résonance magnétique sur le niveau $F = 5/2$ de l'isotope ^{201}Hg [5, 8, 9].** — Le spin nucléaire de cet isotope est $I = 3/2$. La distance des sous-niveaux hyperfins $F = 5/2$ et $F = 3/2$ est $\eta \simeq 14\,000$ MHz. Les distances des sous-niveaux Zeeman du niveau $F = 5/2$ sont données par les formules valables au 2e ordre près en ν'/η.

$$\begin{cases} \nu\left(\pm \frac{5}{2} \rightleftarrows \pm \frac{3}{2}\right) \simeq \frac{3}{5}\nu'\left(1 \pm \frac{9}{10}\frac{\nu'}{\eta}\right) \\ \nu\left(\pm \frac{3}{2} \rightleftarrows \pm \frac{1}{2}\right) \simeq \frac{3}{5}\nu'\left(1 \pm \frac{9}{20}\frac{\nu'}{\eta}\right) \\ \nu\left(-\frac{1}{2} \rightleftarrows +\frac{1}{2}\right) \simeq \frac{3}{5}\nu' \end{cases} \quad \text{(III,8)}$$

ν' étant donné par (III,6).

A la fréquence choisie de 14,48 MHz, l'écart à l'équidistance des niveaux lorsque le champ magnétique a la valeur de résonance n'est que $1{,}7 \cdot 10^{-2}$ de la largeur naturelle d'un sous-niveau. On peut donc

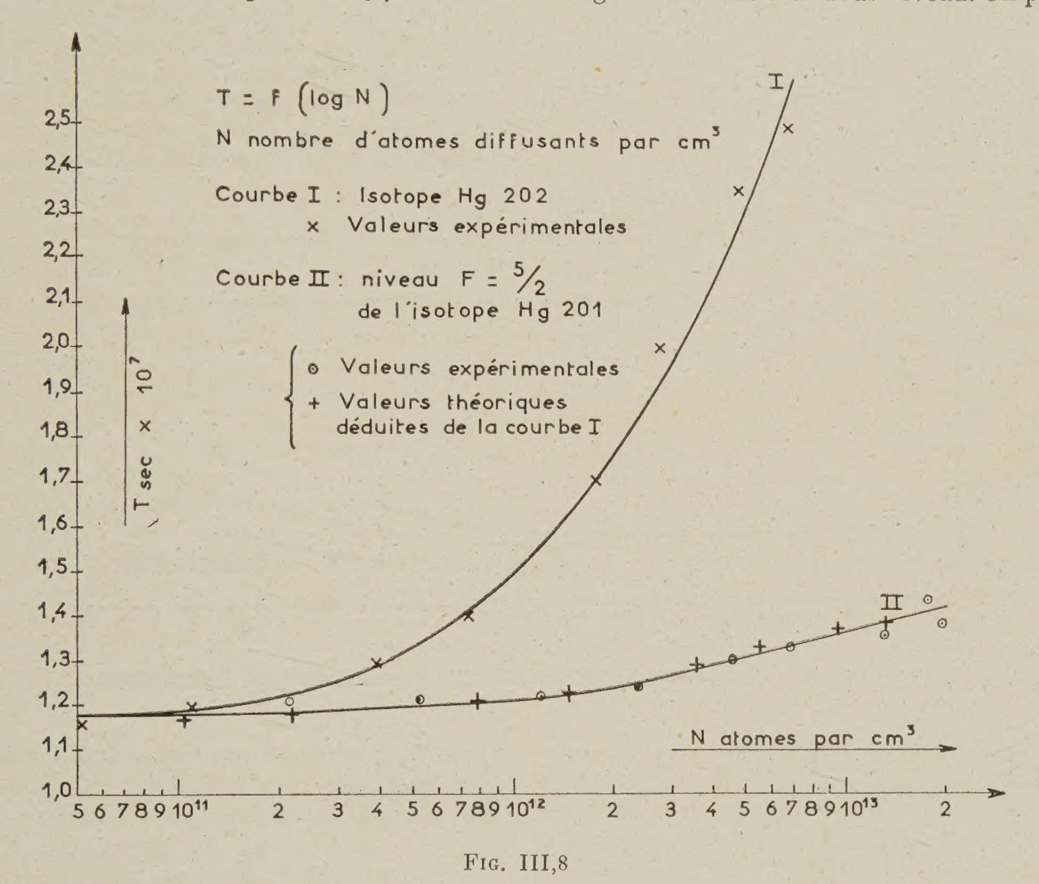


Fig. III,8

s'attendre encore dans ce cas à la validité des résultats de II : la raie doit avoir la forme de Majorana-Brossel, la durée de cohérence $T_{I=3/2,\,F=5/2}$ étant liée par la formule

$$T_{I=3/2,\,F=5/2} = \frac{25\,\tau\, T_{I=0,F=1}\left(\frac{N}{2}\right)}{7\tau + 18\, T_{I=0,F=1}\left(\frac{N}{2}\right)} \quad \text{(III,9)}$$

à la durée de cohérence $T_{I=0,\,F=1}$ des isotopes pairs.

Le mélange isotopique utilisé était enrichi en ^{201}Hg contenant 1,2 % de ^{204}Hg. La source lumineuse contenait un mélange enrichi à 98 % en ^{204}Hg ; elle excitait ainsi sélectivement le niveau $F = 5/2$ de l'isotope ^{201}Hg et le ^{204}Hg présent dans la cellule [10]. On observe donc à la fois les 2 signaux de résonance magnétique correspondants. Il y a encore dans ce cas recouvrement partiel entre les ailes des 2 raies qui sont rendues légèrement dissymétrique. Une correction est donc nécessaire pour déterminer la durée de cohérence cherchée de l'isotope ^{201}Hg. Le détail en a été donné dans les publications antérieures [5, 9].

Le rapport signal sur bruit était légèrement supérieur à celui que l'on observait dans le cas de l'isotope ^{199}Hg. Mais les dérives des signaux étaient considérables étant donné les instabilités de la lampe employée, et les corrections effectuées sont peu sûres. Nous estimons que la précision est du même ordre que dans le cas de l'isotope H^{199}g.

Les réseaux corrigés obtenus satisfaisaient bien à la formule de Majorana-Brossel. La figure III,8 résume les résultats ; nous avons mesuré sur la même cellule $T_{I=0,\ F=1}$ en fonction de N par excitation sélective de l'isotope ^{202}Hg et la formule (III,9) donne les valeurs attendues pour $T_{I=3/2,\ F=5/2}$, en bon accord avec les résultats expérimentaux. La valeur limite aux basses pressions de vapeur est encore $\tau = 1{,}18.10^{-7}$ sec.

9. **Résonance magnétique sur le niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{201}Hg.** — Les fréquence des transitions sont données cette fois par

$$\left\{\begin{array}{l} \nu\left(\pm \frac{3}{2} \rightleftarrows \pm \frac{1}{2}\right) \simeq \frac{2}{5}\nu'\left(1 \pm \frac{68}{15}\frac{\nu'}{\eta}\right) \\ \nu\left(+\frac{1}{2} \rightleftarrows -\frac{1}{2}\right) \simeq \frac{2}{5}\nu'. \end{array}\right. \quad \text{(III,10)}$$

L'excitation sélective de la composante hyperfine correspondante et de la composante de l'isotope ^{198}Hg présent dans la cellule se fait à l'aide d'une lampe contenant l'isotope ^{198}Hg pratiquement pur. Les conditions des mesures sont les mêmes que dans le cas du niveau $F = 5/2$ et les corrections nécessaires sont faites de la même manière.

Une différence importante existe cependant : aux fréquences utilisées qui séparent de manière suffisante la raie de l'isotope pair ^{198}Hg et celle du niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{201}Hg que l'on étudie, les champs résonnants sont assez grands pour que le découplage $\boldsymbol{I}.\boldsymbol{J}$ ne soit plus négligeable dans ce niveau. L'écart des niveaux à l'équidistance vaut aux 3 fréquences utilisées (11,9 MHz, 14,48 MHz et 19 MHz) respectivement 1,4 %, 2 % et 3,5 % de la largeur naturelle de la raie. Dans ce cas, le calcul de la forme de raie est inextricable, même en

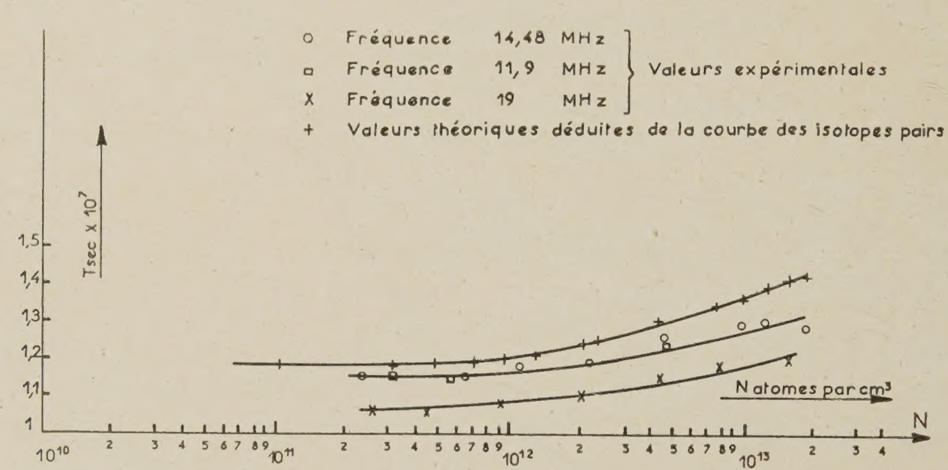


FIG. III,9. $T = f$ (log N), N, nombre d'atomes diffusants par cm³. Isotope ^{201}Hg, Niveau $F = 3/2$.

l'absence de diffusion multiple. Nous avons constaté que les réseaux obtenus différaient légèrement de réseaux de Majorana-Brossel. Les largeurs limites donnaient des valeurs de T plus petites que les valeurs prévues théoriquement par la formule

$$T_{I=3/2,F=3/2} = \frac{25\tau\ T_{I=0,F=1}\left(\frac{N}{3}\right)}{8\tau + 17\ T_{I=0,F=1}\left(\frac{N}{3}\right)} \quad \text{(III,11)}$$

(élargissement par le découplage $\boldsymbol{I}.\boldsymbol{J}$). L'écartement augmente à une pression de vapeur déterminée quand la fréquence augmente, et semble augmenter à fréquence fixe avec la pression de vapeur (cette dernière augmentation est à la limite des erreurs de mesure) (cf. *fig. III*,9).

En l'absence de diffusion multiple, on peut montrer qu'aux très faibles niveaux de radiofréquence (H_1 étant considéré comme une très faible perturbation) la raie observée doit être une superposition par addition de 2 raies de Lorentz, ayant la largeur naturelle, centrées sur les champs résonnants des transitions $m = \pm 3/2 \to \pm 1/2$. On s'attend alors à une largeur limite

$$\Delta\omega = \frac{2}{\tau}\left[1 + \frac{1}{6}\left(\frac{68}{\eta\Gamma}\frac{\pi\nu^2}{}\right)^2\right].$$

Il en résulte une durée de vie apparente lorsque la fréquence résonnante est ν : $\tau_\nu \simeq \tau(1 + \alpha\nu^4)$ avec théoriquement $\alpha = -0{,}56.10^{-6}$, ν étant exprimé en MHz. Les 3 valeurs obtenues pour τ_ν aux faibles valeurs de N aux 3 fréquences choisies ont permis de déterminer τ et α expérimentalement par la méthode des moindres carrés. Nous avons trouvé $\tau = 1{,}18.10^{-7}$ sec et $\alpha = -0{,}78.10^{-6}$. La durée de vie vraie du niveau a bien la valeur prévue et nous estimons satisfaisant l'accord des 2 valeurs de α.

10. **Dépolarisation magnétique dans le cas de l'isotope ^{201}Hg.** — Avec le mélange isotopique, utilisé dans les mesures de résonance magnétique

il est pratiquement impossible de mesurer T par la méthode de dépolarisation magnétique dans le cas de l'isotope ^{201}Hg. En effet, si l'on excite sélectivement les niveaux $F = 3/2$ et $F = 5/2$ au moyen de sources enrichies en ^{198}Hg et ^{204}Hg respectivement, la résonance optique observée résulte de la diffusion des photons par l'isotope pair et l'isotope ^{201}Hg à étudier. La courbe donnant le taux de polarisation P en fonction du champ H_0 autour de la valeur $H_0 = 0$ résulte de la superposition des courbes des deux isotopes ; chacun a une largeur différente (pour T donné, la largeur est inversement proportionnelle au facteur de Landé g) et la largeur de la courbe observée ne permet pas d'obtenir de renseignements sur les isotopes pris séparément. Nous avons tenté les mesures avec un mélange isotopique fourni par le C. E. A. qui contient un pourcentage particulièrement faible des isotopes ^{204}Hg et ^{198}Hg.

Les résultats ont été satisfaisants dans l'ensemble, bien que perturbés encore par la présence de l'isotope pair, principalement aux pressions de vapeur élevées (la lumière de résonance de l'isotope impair étant presque totalement dépolarisée, celle de l'isotope pair prend de plus en plus d'importance quand la pression de vapeur augmente).

Conclusion. — Nous estimons, en résumé, avoir établi les faits suivants :

— Dans le cas du mercure, et au moins dans la zone de densités de vapeur étudiée ($10^{10} < N < 2$ à 3.10^{13} atomes par cm^3), la diffusion multiple des photons de la raie de résonance 2 537 Å est responsable quand N augmente : *a*) de l'affinement des raies de résonance magnétique observé ; *b*) de l'affinement des courbes de dépolarisation magnétique en champ magnétique faible et de l'augmentation de la durée de vie apparente T du niveau 6 $^3P_1$ mesuré par ces deux méthodes ; *c*) de la diminution du taux de polarisation P de la lumière de résonance optique.

— Dans les conditions précédentes, les collisions interatomiques n'interviennent pas dans ces divers effets.

— La théorie développée permet de rendre compte qualitativement et quantitativement de ces effets moyennant un certain nombre d'approximations et de simplifications. En particulier, nous avons obtenu des formules reliant entre elles les grandeurs T et P correspondant aux différents niveaux hyperfins des isotopes du mercure. Les résultats expérimentaux sont en général en bon accord avec les prévisions théoriques.

— La durée de vie vraie du niveau 6 $^3P_1$ est $\tau = (118 \pm 0{,}02).10^{-7}$ sec, la même pour tous les niveaux hyperfins de tous les isotopes étudiés.

Dans le cas particulier où l'on isole des photons ayant été diffusés deux fois par les atomes de mercure, la forme de la raie de résonance magnétique observée et sa largeur sont celles que prévoient les résultats théoriques.

— Si l'on excite le mélange d'isotopes pairs contenu dans le mercure naturel par une source contenant ce même mélange, la forme de la raie ne peut être pratiquement distinguée d'une forme théorique de Majorana-Brossel, ce qui permet de comprendre les résultats de Brossel et de Blamont.

Pratiquement, peu d'applications de ces résultats peuvent être envisagées. Il est difficile de se servir de l'affinement des raies pour améliorer la précision de la mesure du rapport gyromagnétique du niveau 6 $^3P_1$ du mercure : lorsque la largeur des raies devient 2 ou 3 fois plus petite que la largeur naturelle du niveau, le rapport signal sur bruit devient très mauvais et la mesure devient plutôt moins précise. Un optimum de précision semble atteint pour une densité de vapeur correspondant à une température du queusot voisine de 0 °C ; ce sont les conditions expérimentales utilisées par Brossel dont nous n'avons pas tenté d'améliorer le résultat.

Nous noterons aussi que l'importance particulière du phénomène dans le cas des isotopes pairs du mercure est liée à l'existence d'un niveau fondamental dans lequel $J = 0$. Il en résulte d'une part une valeur en général assez élevée du taux de polarisation, même lorsque la diffusion multiple est importante, ce qui rend les mesures relativement faciles. D'autre part, on conçoit physiquement que l'absence de structure Zeeman dans l'état fondamental facilite les effets de cohérence dans la diffusion multiple, si bien que l'affinement de la raie est très important. Avec un isotope impair, un atome peut tomber dans le sous-niveau Zeeman $|\mu >$ en émettant un photon qui excite un 2e atome situé primitivement dans le sous-niveau Zeeman $|\mu' >$; si $\mu' \neq \mu$, il est clair qu'un tel processus a beaucoup moins de chances de maintenir la cohérence et de contribuer à l'affinement de la raie que si $\mu' = \mu$. La théorie (cf. II, tableau 1), en accord avec l'expérience (cf. III), prévoit effectivement une augmentation de la durée de cohérence beaucoup plus importante dans le cas des isotopes pairs que dans le cas des isotopes à spin nucléaire. Par contre, la diminution du taux de polarisation est plus rapide pour les isotopes impairs, et les mesures sont beaucoup plus difficiles.

Il en résulte en particulier qu'il semble difficile d'étendre les applications de ces résultats à d'autres éléments que le mercure ou ceux du groupe II de la classification périodique. Pour les éléments tels que les métaux alcalins, dont les moments angulaires sont élevés dans le niveau fondamental et le niveau excité, l'effet n'est sans doute pas aussi important. Notons en outre que les hypothèses faites au cours de notre calcul ne sont généralement plus valables dans ce cas (par exemple la structure hyperfine peut être inférieure à l'effet Doppler ou être du même

ordre, si bien que les diverses composantes hyperfines ne sont pas bien isolées dans le spectre). Toutefois, nous pensons utile de faire remarquer que des effets de cohérence, analogues à ceux que nous avons observés, pourront se produire chaque fois qu'une excitation passera par l'intermédiaire du rayonnement électromagnétique d'un système atomique à un autre identique, dans des cas beaucoup plus généraux que celui du rayonnement de résonance (propagation des excitons dans les solides par exemple). Mais il faudra, pour observer ces effets, réaliser des conditions telles que la fonction d'onde de chaque système soit une superposition cohérente des différents états propres de l'énergie.

Il serait souhaitable également d'étendre les calculs et les résultats expérimentaux au cas où l'effet Zeeman devient grand devant la largeur Doppler de la raie optique (isotopes pairs du mercure en champ magnétique intense), — ou dans le cas de niveaux non équidistants (isotopes impairs en champ moyen ou cas de l'effet Stark, même pour les isotopes pairs) — et enfin dans le cas où on étudie des transitions hyperfines $\Delta F = 1$. Nous pensons aussi que l'étude des élargissements de raie que l'on observe aux pressions de vapeur élevées mérite d'être développée, permettant ainsi de confirmer la réalité de cet effet et d'en déterminer l'origine.

Manuscrit reçu le 10 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Barrat (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1959, **21**, 541, désigné dans la suite par I.
[2] Barrat (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1959, **21**, 633, désigné dans la suite par II.
[3] Rollet (N.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1955. Rollet (N.), Brossel (J.) et Kastler (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 240.
[4] Guiochon (M. A.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1956. Blamont (J. E.), *Thèse*, 1957 ; *Ann. Physique*, 1957, **2**, 551. Guiochon (M. A.), Blamont (J. E.) et Brossel (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1859 ; *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 99.
[5] Boutron (F.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1957. Boutron (F.), Barrat (J. P.) et Brossel (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 2250.
[6] Barrat (J. P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957 **244**, 2785.
[7] Barrat (J. P.) et Brossel (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2744.
[8] Barrat (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 858.
[9] Barrat (J. P.), *Thèse*, Paris, 1959, n° de microfilm C. N. R. S., 38808.
[10] Schuler (H.) et Keyston (J. E.), *Z. Physik*, 1931, **72**, 423. Schuler (H.) et Jones (E. G.), *Z. Physik*, 1932, **74**, 631. Bitter (F.), *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 1531. Sagalyn (P.), Melissinos (A. C.) et Bitter (F.), *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 375.
[11] Voir Mitchell et Zemansky, " Resonance Radiation and Excited Atoms ", ch. V.
[12] Brossel (J.), *Thèse*, Paris, 1952 ; *Ann. Physique*, 1952, **7**, 622.
[13] Holstein (T.), Alpert (D.) et McCoubrey (A. O.), *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 985.

RÉSONANCE MAGNÉTIQUE DE NIVEAUX ATOMIQUES EXCITÉS PAR BOMBARDEMENT ÉLECTRONIQUE

PREMIÈRE PARTIE

Par J. C. PEBAY-PEYROULA,
Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure.

Résumé. — Un bombardement électronique, dans une expérience analogue à celle de Franck et Hertz produit un alignement dans des états atomiques excités. Nous montrons qu'il est possible d'étudier la résonance magnétique dans ces états. D'autres résonances que nous avons identifiées à des résonances cyclotrons apparaissent également et peuvent être pratiquement éliminées en agissant sur la géométrie des électrodes.

Nous avons mis en évidence sur l'atome de mercure les résonances magnétiques des niveaux $6\,^3F_4$, $5d^9\,6s^2\,6p\,^1D_2$ et d'un niveau $^3P_2$ imparfaitement déterminé.

Abstract. — Electron bombardement produces alignment in the atomic excited states reached in a Franck and Hertz type of experiment. This allows one to observe magnetic resonance in those states. Other resonances have been observed and identified as cyclotron resonances. Careful design of the electrodes practically eliminates these.

In the mercury atom resonances have been observed in the $6\,^3F_4$, $5d^9\,6s^2\,6p\,^1D_2$ levels and in a $^3P_2$ level the configuration of which has not been determined with certainty.

Introduction. — Depuis une vingtaine d'années, les méthodes expérimentales d'étude des atomes ont fait de nombreux progrès. En spectroscopie classique, l'emploi des étalons interférentiels a été porté à un grand degré de perfectionnement, et il a été possible par l'étude de la structure de différentes raies optiques de déterminer la structure hyperfine de nombreux niveaux excités. Malheureusement la précision de ces résultats, malgré le perfectionnement des sources lumineuses employées, est limitée par l'effet Doppler-Fizeau.

Dans les expériences de résonance hertzienne, on observe des transitions dont la fréquence est beaucoup plus faible que celle des transitions optiques. L'élargissement créé par l'effet Doppler est négligeable et généralement c'est la largeur naturelle des niveaux excités qui limite la précision des mesures. Ces méthodes se sont révélées très fécondes et en particulier la résonance magnétique qui consiste à détruire par un champ magnétique oscillant de fréquence convenable une inégalité de population créée au préalable entre les sous-niveaux magnétiques d'un état atomique [1].

En 1949, J. Brossel et A. Kastler ont proposé d'obtenir cette inégalité de population dans les états excités grâce à une excitation en lumière polarisée [2]. Ce principe peut s'appliquer au niveau fondamental par un processus de pompage optique [3]. De nombreux résultats ont été obtenus par cette méthode. Dans le cas de l'état fondamental : étude du niveau $3\,^2S_{1/2}$ du sodium, du niveau $6\,^2S_{1/2}$ du césium, découverte des transitions à plusieurs quanta, orientation atomique de la vapeur de sodium et de césium [4], orientation nucléaire de l'isotope 201 du mercure [5]. Dans le cas des niveaux excités, J. Brossel a fait une étude systématique de cette méthode pour l'état $6\,^3P_1$ de l'atome de mercure [6], [7] et a montré que l'on pouvait ainsi mesurer le facteur de Landé et la durée de vie de l'état excité. D'autres physiciens ont, par cette technique, mesuré des structures hyperfines et déterminé les moments quadrupolaires électriques nucléaires dans le cas du mercure [8], du zinc [9] et des métaux alcalins [10], [11], [12], [13].

J. Brossel a montré que la forme des raies de résonance ne dépendait que de deux paramètres : l'intensité du champ de radiofréquence et une durée de cohérence T_e qu'il avait identifiée tout d'abord avec la durée de vie mais qui s'est révélée dépendre du nombre d'atomes par unité de volume. Ce phénomène est lié à la diffusion multiple [14].

Le paramètre T_e tend vers la durée de vie τ pour les faibles densités de vapeur. Pour les raies autres que la raie de résonance, le phénomène de diffusion multiple de la lumière est négligeable, et l'étude de la forme des raies permet d'obtenir directement la durée de vie.

Dans le cas d'isotope à spin nucléaire, outre les transitions $\Delta F = 0$ du même type que les transitions précédentes, il est possible d'induire des transitions $\Delta F = 1$ [15]. Si le champ magnétique est nul, la fréquence de transition correspond à la structure hyperfine du niveau.

Cette méthode ne peut malheureusement s'appliquer qu'aux niveaux de résonance qui peuvent être atteints par excitation optique à partir du niveau fondamental. En outre, pour beaucoup d'éléments — en particulier les gaz rares — les raies de résonance sont situées dans l'ultra-violet lointain et

les difficultés expérimentales rendent l'expérience impossible. L'excitation par échelon ne s'est révélée possible que dans des cas particuliers [16].

Vers 1930, quelques expérimentateurs ont montré que de nombreuses raies émises lorsque l'on bombarde des atomes par des électrons de faible énergie sont partiellement polarisées. Le bombardement électronique (comme l'excitation optique) permet donc d'obtenir une différence de population entre les sous-niveaux Zeeman des différents états excités et en principe on se trouve dans les conditions où la résonance magnétique peut être observée. Il devient ainsi possible d'étudier des états excités, inaccessibles par d'autres méthodes, de déterminer leur durée de vie, leur facteur de Landé et leur structure hyperfine [2], [17].

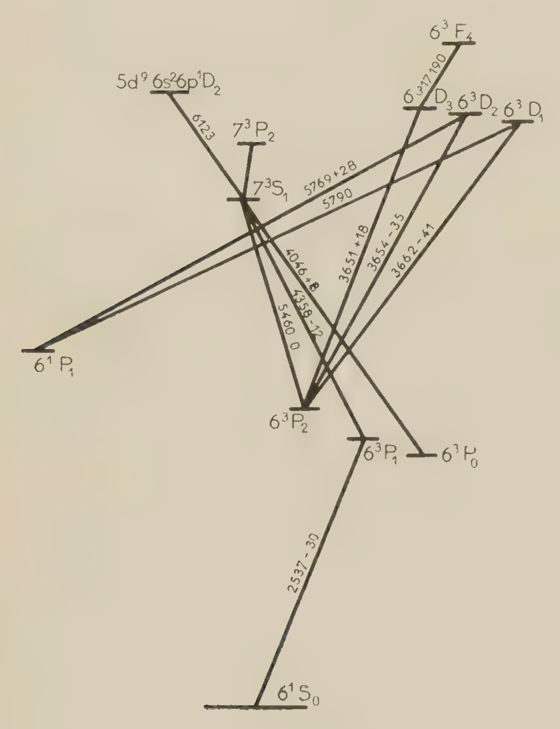


Fig. I,1. — *Niveaux énergétiques du mercure.*

Ne sont représentés sur cette figure que les niveaux et transitions cités dans le courant de cette étude.

Le degré de polarisation donné par Skinner et Appleyard [26] est indiqué après la longueur d'onde de chaque transition.

Pendant le cours de notre travail, nous nous sommes efforcés de mettre au point cette méthode. L'élément choisi était le mercure. De nombreuses raisons nous ont imposé ce choix : La tension de vapeur importante à la température ambiante simplifie le montage expérimental ; la plupart des raies du spectre du mercure se trouvent dans le proche ultra-violet et dans le visible. Elles peuvent être aisément isolées à l'aide de filtres colorés et de filtres interférentiels, et leur polarisation, lorsqu'elles sont excitées par bombardement électronique, a été étudiée complètement par Skinner et Appleyard ; enfin, et ceci est la raison essentielle, le niveau $6\,^3P_1$ a été étudié en détail par J. Brossel [7]. Ce niveau a pu nous servir de test des possibilités de la méthode. En l'excitant par chocs électroniques, nous avons réussi à obtenir des courbes de résonance semblables à celles obtenues par Brossel et redonnant les mêmes valeurs pour le facteur de Landé et la durée de vie.

En acroissant la vitesse des électrons, nous avons pu observer plusieurs autres courbes de résonance. Nous sommes parvenus à identifier la plupart d'entre elles, c'est-à-dire à les attribuer à des niveaux connus de l'atome de mercure dont nous avons pu déterminer les caractéristiques. Ce sont les niveaux $6\,^3F_4$, $5d^9\,6s^2\,6p\,^1D_2$ et niveau $^3P_2$ imparfaitement déterminé (*fig.* I,1).

L'interprétation des résultats expérimentaux a été le plus souvent rendue difficile par des effets de cascade et par le fait que la configuration des états excités est souvent complexe.

Certains de ces résultats ont été donnés dans différentes publications [18, 19, 20].

Polarisation des raies excitées par bombardement électronique. — Entre 1929 et 1930, plusieurs expérimentateurs ont étudié la polarisation de la lumière émise par des atomes excités par bombardement électronique. Le mercure, le sodium le néon, l'hélium ont principalement été étudiés [21 à 27]. Les appareillages et les résultats ont été décrits en particulier par Kossel et Gerthsen [21], Ellett, Foote et Mohler [22], et surtout par Skinner et Appleyard [26].

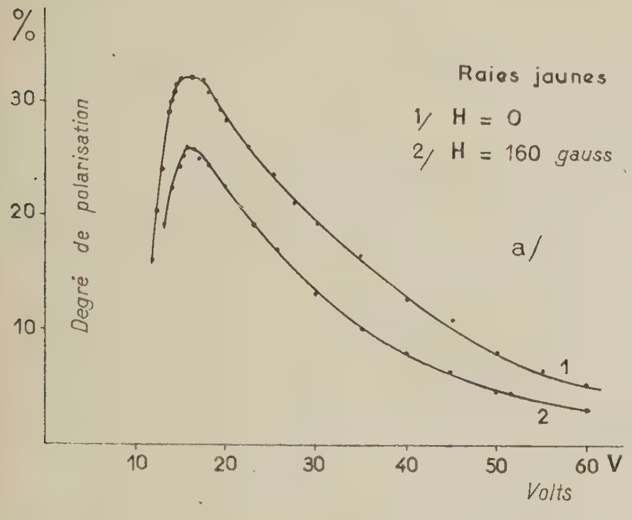
Résultats expérimentaux. — Les travaux des différents expérimentateurs ont porté sur l'influence de l'énergie des électrons sur le degré de polarisation P des radiations émises.

$$P = \frac{I_{//} - I_{\perp}}{I_{\perp} + I_{//}}$$

$I_{//}$ et $I_{\perp}$ désignant respectivement les intensités des composantes polarisées orthogonales, $I_{//}$ composante dont le vecteur électrique est parallèle à la direction du jet électronique (et du champ magnétique H_0) et $I_{\perp}$ composante dont le vecteur électrique est perpendiculaire à cette direction.

Les courbes donnant P en fonction de l'énergie des électrons ont toujours le même aspect (*fig.* I,2) : P est nul pour l'énergie correspondant au seuil d'excitation V_e, présente un maximum pour V_m, $V_m - V_e$ étant de l'ordre de quelques volts, puis décroît. Pour certaines raies, P s'annule pour la valeur V_1 et change de signe pour les énergies supérieures. Skinner et Appleyard ont ainsi étudié en détail les différentes raies du mercure. La précision absolue sur P est environ 0,01 au maximum de

polarisation et est beaucoup moins bonne au niveau du seuil d'excitation, l'intensité de la raie devenant alors très faible. Les raies de résonances du sodium ($3P_{3/2} - 3S_{1/2}$, $3P_{1/2} - 3S_{1/2}$) ont été également étudiées [21]. Aucune polarisation appréciable n'a



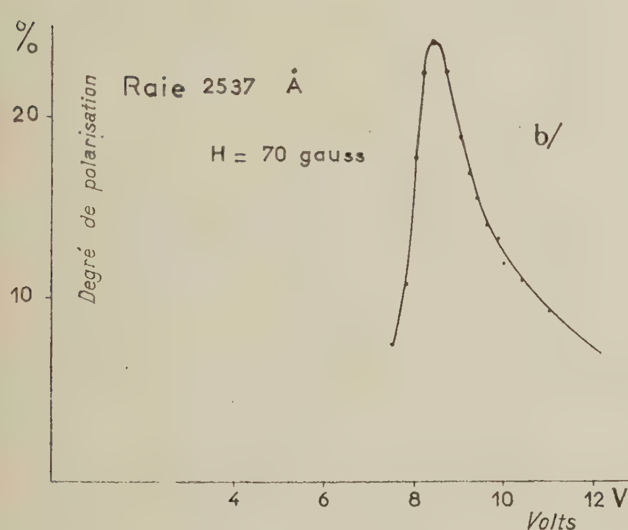


FIG. I,2. — Polarisation des raies excitées par bombardement électronique.
a) Raies jaunes. *b*) Raie 2 537 Å.

été trouvée, mais dans des expériences que nous avons faites sur le sodium, nous avons étudié les résonances magnétiques des niveaux $4D_{5/2}$, $5D_{3/2}$ et $5D_{5/2}$ en étudiant les raies $4D - 3P$ (5 683 Å-5 688 Å) et $5D - 3P$ (4 979 Å et 4 983 Å). Ces radiations sont polarisées, le taux de polarisation est approximativement de 15 %. Nous n'avons pas fait de mesures plus précises de taux de polarisation, notre appareillage ne s'y prêtant pas.

ORIGINE DE LA POLARISATION. DIFFÉRENTES THÉORIES. — La discussion d'un modèle idéal formé par un atome à un électron, sans spin, montre l'origine des effets de polarisation. Considérons le cas où l'électron possède une énergie cinétique juste suffisante pour exciter l'atome, un champ magnétique étant parallèle à la direction des électrons ; le moment angulaire de l'électron, avant le choc, est dans un plan normal à la vitesse. Après le choc, la vitesse de l'électron est nulle : ce dernier ne peut emporter aucun moment angulaire. En faisant le bilan du moment angulaire, le choc a transféré à l'atome un moment angulaire perpendiculaire au champ magnétique. Le passage de l'état fondamental à l'état excité ne peut donc pas être accompagné d'un changement de la composante du moment angulaire parallèle au champ et la transition se fait avec $\Delta m = 0$. Lorsque l'atome retombera à l'état fondamental, d'après les règles de sélection de l'effet Zeeman, la lumière sera polarisée parallèlement à la direction du jet électronique. D'après le principe de stabilité spectroscopique, nous obtiendrons le même état de polarisation en l'absence de champ magnétique.

Ces résultats sont évidemment très approchés, et de nombreux auteurs se sont efforcés d'obtenir une interprétation en accord avec l'expérience (1).

Durant ces dernières années, l'étude des sections efficaces de collisions atomes-électrons de basse énergie a été développée, en particulier pour l'hélium, pour Massey et ses collaborateurs [29 à 32] Seaton [33], [34] a étudié d'une façon analogue la polarisation de la lumière émise après la collision, mais des différences subsistent avec les résultats expérimentaux, notamment auprès du seuil d'excitation. Dans l'état actuel de la théorie, on ne peut donc donner encore aucune règle générale permettant de prévoir les états de polarisation des raies observées. Ceci ne nous empêche pas de tirer parti de cette polarisation et d'interpréter nos résultats, et nous verrons, dans le chapitre consacré à l'étude des raies de résonance, que les résultats essentiels : durée de vie, facteur de Landé, structure hyperfine, peuvent être mesurés sans connaître les populations respectives des différents sous-niveaux. Seule une différence de population est nécessaire.

Application aux méthodes de résonance hertzienne. — Nous pouvons facilement transposer l'expérience de Brossel en remplaçant l'excitation optique de la vapeur de mercure par une excitation électronique réalisée suivant les conditions décrites précédemment par un jet d'électrons lents dirigés suivant Oz. L'état de polarisation de la lumière émise observée suivant Ox ou Oy sera comparable à celui observé dans le cas de l'excitation optique, le taux de polarisation étant généralement plus faible. Un champ tournant d'axe Oz, ou plus sim-

(1) Une analyse critique de ces travaux est faite par Lamb [28].

plement un champ oscillant H_1 que nous pouvons prendre dirigé suivant Oy, pourra donc induire des transitions de résonance magnétique. L'observation de ces résonances se fera comme dans la méthode de Brossel en étudiant le taux de polarisation de la lumière émise suivant Ox.

Outre l'interprétation difficile des résonances observées (à cause de l'impossibilité de résoudre totalement les différentes raies du spectre en conservant un flux lumineux acceptable), deux difficultés essentielles apparaissent du point de vue expérimental :

Le champ magnétique oscillant s'accompagne d'un champ électrique qui peut provoquer dans la vapeur de mercure un régime de décharge favorisé par la présence d'électrons. Cette décharge est instable, et les effets de polarisation disparaissent. En plus, des phénomènes de résonance cyclotron des électrons du jet peuvent être très importants et masquer ou déformer les résonances magnétiques. Nous nous sommes donc efforcés d'éliminer ces phénomènes afin d'obtenir les courbes de résonance dans les meilleures conditions d'observation et de reproductibilité.

Des travaux utilisant des techniques analogues à celles décrites ci-dessus ont été effectués à la même époque par d'autres auteurs :

— Dehmelt [35] a étudié le niveau métastable $6\,^3P_2$ du mercure par une méthode voisine : le bombardement électronique très intense produit une grande quantité d'atomes dans l'état métastable $6\,^3P_2$, les sous-niveaux Zeeman étant inégalement peuplés. La résonance magnétique de cet état, induite par un champ magnétique oscillant est détectée en étudiant l'absorption de la radiation 5 640 Å, $7\,^3S_1 — 6\,^3P_2$. Cette expérience est actuellement développée par Aubrey et Bradley [36].

— Lamb et ses collaborateurs ont également utilisé l'effet de polarisation par bombardement électronique dans la détermination de la structure fine des niveaux $3\,^3P$ et $2\,^3P$ de l'hélium [28], [37].

Montage expérimental. — Le montage utilisé s'inspire en beaucoup de points du montage de Brossel dont une description détaillée a été donnée [7]. La figure I,3 donne le schéma général de notre montage.

I. Le tube électronique. — Plusieurs raisons imposent l'emploi d'une cathode à oxyde : la surface émettrice doit être équipotentielle ; la température de fonctionnement doit être assez basse, afin de limiter au maximum les sources de lumière parasite ; la puissance électrique nécessaire au chauffage doit être la plus faible possible pour réduire au maximum les champs magnétiques parasites ; les diverses tensions accélératrices sont de l'ordre d'une dizaine de volts. Pour avoir un débit électronique convenable, la surface émettrice doit être assez grande.

Nous avons donc opéré dans des enceintes scellées construites suivant la technique radioélectrique. Un vide excellent s'est toujours maintenu dans les différents tubes que nous avons construits, et le fonctionnement de la cathode a été toujours extrêmement régulier.

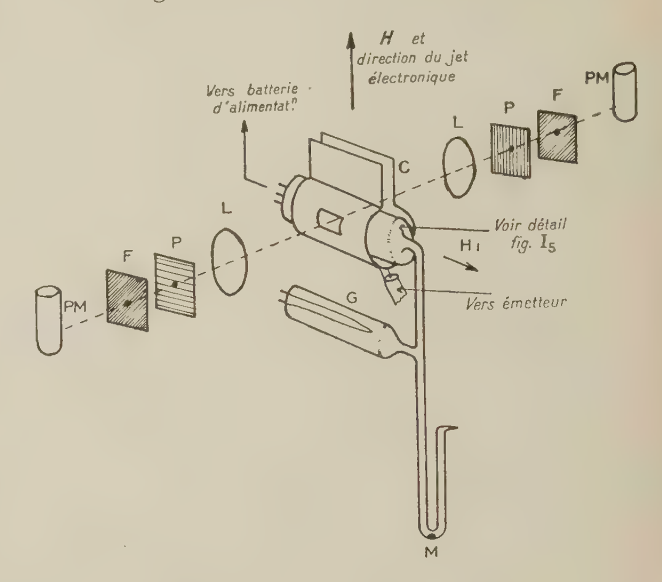


Fig. I,3. — *Schéma du montage.*

C, circuit oscillant. G, getter au titane. L, lentille. P, polaroïd, F, filtre. PM, photomultiplicateur. M, goutte de mercure.

Après fabrication, l'enceinte est vidée, dégazée par étuvage et par chauffage haute fréquence des électrodes. Une goutte de mercure est distillée dans le queusot, la cathode est formée et lorsque le courant électronique est stabilisé et le vide excellent, l'enceinte est scellée.

Des getters sont nécessaires pour maintenir un vide parfait malgré le fonctionnement de la cathode qui risque de dégazer. Les premiers tubes ont été munis de getters industriels au baryum. Le dépôt de baryum formé est très avide de mercure et une grande quantité de mercure est nécessaire pour saturer la surface du baryum. Il est ensuite difficile de régler la pression de vapeur dans l'enceinte en agissant sur la température de la goutte de mercure contenue dans le queusot. En outre, il est impossible d'employer un isotope séparé dont on possède une quantité très faible.

Quelques essais nous ont conduits à un getter formé par un film de titane obtenu par la vaporisation d'un fil de titane de 0,1 mm enroulé sur un fil de tungstène que l'on peut chauffer par effet Joule. Un tel getter est beaucoup moins avide de mercure que le getter au baryum.

Description des différents tubes électroniques employés. — Deux types différents ont été réalisés.

1) Les électrons émis par la cathode (*fig.* I,4) sont accélérés par l'électrode A au potentiel V_1 qui ne laisse passer qu'un pinceau de dimension 10 × 2 mm, l'électrode B ainsi que l'anode P sont portées au potentiel V_2. Dans l'espace compris entre B et P, les électrons ont, suivant Oz, une vitesse uniforme $V_2 - V_e$, V_e étant le potentiel d'extraction de la cathode. Le courant anodique est d'environ 0,3 mA pour $V_1 = V_2 = 16$ volts. L'électrode B forme en outre l'extrémité d'une ligne haute fréquence accordée. Le pinceau électronique a une longueur d'environ 20 mm. Deux fenêtres en quartz, raccordées à l'ampoule en verre au molybdène à l'aide d'anneaux de verre intermédiaire, permettent l'observation des raies ultraviolettes.

2) Une grille à maille lâche, placée à 2 mm de la cathode (*fig.* I,5) est portée au même potentiel que l'anode. Le pinceau d'électron, dans l'espace d'observation compris entre la grille et l'anode, a une section de 15 × 8 mm et une longueur de 4 mm. Le circuit de haute fréquence est placé à l'extérieur du tube. Lorsque l'anode et la grille sont portées au même potentiel, le débit anodique est d'environ 2 mA pour $V_1 = V_2 = 16$ volts.

Nous utilisons comme cathodes celles utilisées habituellement sur le tube d'émission 4Y100. Le filament d'origine, formé par un fil replié en *U* consommant environ 3,75 ampères, provoque un champ magnétique parasite dans la région d'observation. Ce champ très inhomogène, d'environ 0,5 gauss, apporte des distorsions inacceptables des courbes de résonance. Pour réduire cet effet, nous avons employé 6 filaments de UL41 (40 volts, 0,1 ampère) branchés en parallèle disposés côte à côte. Le champ magnétique parasite est alors inférieur à 10^{-2} gauss.

II. Champ magnétique. — Le champ magnétique est créé par deux bobines en position d'Helmholtz refroidies par eau, développant au maximum 500 gauss pour un courant magnétisant de 6 ampères. L'alimentation se fait au moyen de batteries au plomb.

Pour les mesures précises, un autre ensemble de bobines d'Helmholtz d'un diamètre moyen de 70 cm a été employé. Elles permettaient d'obtenir un champ de 200 gauss environ. L'homogénéité est de l'ordre de 10^{-4} sur une sphère de 3 cm de rayon.

III. Champ de haute fréquence. — Le champ magnétique ayant la direction Oz, les transitions dipolaires magnétiques sont provoquées par un champ oscillant circulaire dans le plan xOy. Nous pouvons donc opérer indifféremment avec un champ oscillant rectiligne d'axe Ox ou Oy.

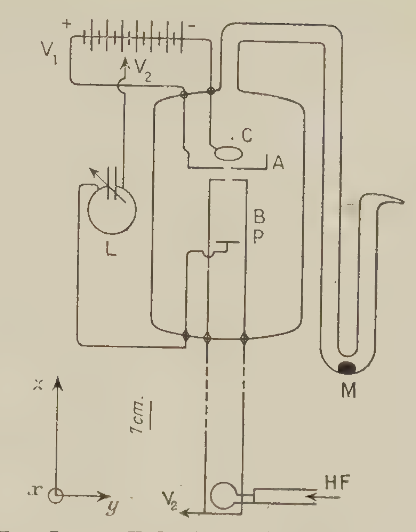


Fig. I,4. — *Tube électronique n° 1.*
C, cathode. A, électrode accélératrice. B, ligne HF. P, anode. L, circuit de compensation. M, goutte de mercure.

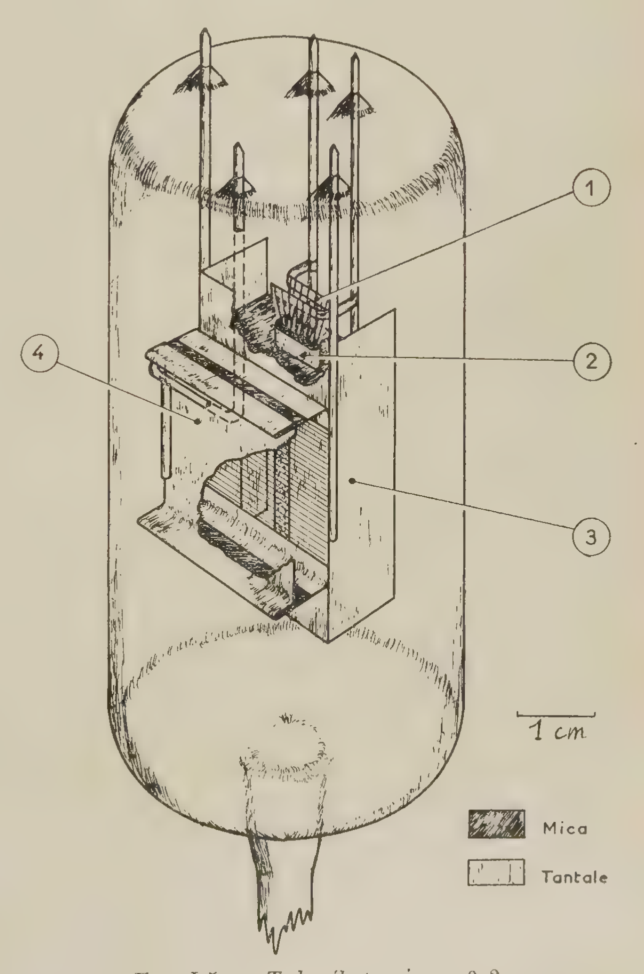


Fig. I,5. — *Tube électronique n° 2.*
1 : filaments. 2 : cathode. 3 : écran et support de grille. 4 : anode.

Les premières expériences ont été effectuées avec le tube électronique du type (1). L'électrode B forme l'extrémité d'une ligne résonnante en $\lambda/2$ formée par deux conducteurs plans parallèles d'une largeur de 30 mm et dont la distance est 10 mm (*fig.* I,4). Une boucle de couplage permet l'excitation de cette ligne à l'aide d'un émetteur à 140 Mc/s. Ce montage permet d'avoir un champ magnétique oscillant d'amplitude maximum au niveau du pinceau électronique alors que le champ électrique est faible. Un champ oscillant de 3 gauss peut être ainsi obtenu avec une puissance de 70 watts.

Pour les tubes électroniques du type (2), le champ magnétique oscillant est créé par un circuit accordé extérieur. Différents circuits ont permis d'opérer aux fréquences de 25 Mc/s, 50 Mc/s, 140 Mc/s, 238 Mc/s, 307 Mc/s, 378 Mc/s et 594 Mc/s.

Nous disposions de plusieurs émetteurs formés d'un pilote à quartz et d'une chaîne multiplicatrice de fréquence. La puissance fournie pouvait atteindre 70 watts à 140 Mc/s et 15 watts à 594 Mc/s

Le champ oscillant H_1 est mesuré en valeur relative à l'aide d'un voltmètre de crête branché aux bornes d'un circuit oscillant placé à proximité du tube électronique.

IV. — Les différentes électrodes sont alimentées à l'aide de batteries au plomb. Lorsque l'on applique le champ de radiofréquence, il existe au niveau des différentes électrodes un champ électrique oscillant parasite qui provoque une modulation de la vitesse des électrons. Cette modulation dépolarise partiellement, et même totalement, pour certaines raies, la lumière émise. En plaçant judicieusement dans le circuit anodique une boucle de compensation accordée L, nous pouvons atténuer considérablement ce phénomène (*fig.* I,4).

V. Montage optique. — Dans chacune des directions d'observation, le faisceau lumineux passe à travers un prisme de Glazebrook (ou un polaroïd dans le cas des radiations visibles), une lentille, un filtre — filtre coloré ou filtre interférentiel — et tombe sur la cathode du photomultiplicateur. Différents photomultiplicateurs ont été utilisés :

IP28 pour la bande 2 500 Å-3 600 Å ;
IP21 ou 5189 pour la bande 3 600 Å-5 000 Å ;
6217 au-dessus de 5 000 Å.

Le photomultiplicateur 6217 était placé dans une enceinte pouvant être refroidie à l'air liquide pour diminuer le courant d'obscurité et améliorer ainsi le rapport signal-bruit.

Les courants anodiques des deux photomultiplicateurs sont opposés dans un pont de résistance et leur différence est mesurée à l'aide d'un galvanomètre dont la sensibilité est de 2.10^{-11} amp/mm à 1 mètre et la période de 12 sec. La déviation est alors, moyennant certains précautions d'équilibrage, proportionnelle à la variation du degré de polarisation de la lumière émise.

Nous pouvons enregistrer les déviations du spot du galvanomètre à l'aide d'un suiveur de spot SEFRAM, un dispositif électronique permettant de faire varier linéairement dans le temps le courant de l'aimant.

Étude expérimentale du montage. — I. Expériences préliminaires.

Avant la recherche systématique des résonances magnétiques, nous avons fait les expériences suivantes :

Étude spectroscopique de la lumière émise. — Nous avons employé un spectrographe Hilger à optique de quartz et à grande dispersion. Les différents clichés obtenus nous montrent que nous obtenons exclusivement les raies de HgI et nous fournissent d'autre part des renseignements qualitatifs sur les intensités relatives des différentes raies.

Influence du champ magnétique sur le degré de polarisation. — D'après Skinner et Appleyard [26], un champ de 40 gauss parallèle au jet d'électrons modifie peu le degré de polarisation. Nous avons précisé ce point très important en étudiant l'influence du champ magnétique sur le degré de polarisation pour différentes raies du spectre. La figure I_2 donne un exemple des résultats obtenus. L'influence du champ magnétique est donc faible.

Les différentes résonances sont étudiées à fréquence fixe en balayant en champ magnétique. Une légère variation continue du taux de polarisation s'ajoute aux courbes de résonance et il est nécessaire de faire une correction.

Influence du champ de radiofréquence. — Pour faire la résonance magnétique, nous devons appliquer aux atomes soumis au bombardement électronique, un champ magnétique oscillant H_1. Il est expérimentalement impossible d'appliquer à un certain volume, un champ magnétique de haute fréquence sans également lui appliquer un champ électrique oscillant. Nous pouvons attendre différents effets :

a) *Décharges.* — Dans ce cas, le processus d'émission de lumière est complexe, et l'on n'observe plus de polarisation. La région d'observation est placée dans un système résonnant où le champ magnétique est maximum, et par suite, le champ électrique minimum, il est donc facile d'éviter les décharges. Il a été possible, en appliquant 50 watts environ, d'obtenir des champs oscillants de l'ordre du gauss, la pression de vapeur de mercure étant de $0{,}5.10^{-3}$ mm Hg ($t \# 10$ °C) sans aucun phénomène de décharge.

b) *Dépolarisation.* — La fréquence est choisie de façon qu'il ne se produise aucune résonance. Pour

une puissance élevée, nous constatons qu'il subsiste encore un degré de polarisation appréciable. Nous attribuons la dépolarisation à la modulation de vitesse introduite par le champ électrique de radiofréquence.

Ces différentes expériences nous montrent que les conditions nécessaires à l'observation de la résonance magnétique des niveaux excités peuvent être réalisées. Cependant, le taux de polarisation variant avec le niveau du champ oscillant, l'étude des amplitudes des résonances telle qu'elle a pu être faite dans le cas du niveau $6\,^3P_1$ excité optiquement, ne sera pas possible [7].

II. Phénomènes parasites : « *Résonance cyclotron* ».

Avec le tube électronique n° 1, nous avons constaté qu'en faisant varier le champ magnétique en présence du champ oscillant H_1 à la fréquence constante de 141 Mc/s, il apparaissait des résonances parasites importantes pour les champs magnétiques correspondant au facteur de Landé $g = 1$ et $g = 2$ (*fig.* I,6). Leur aspect est indépendant des raies

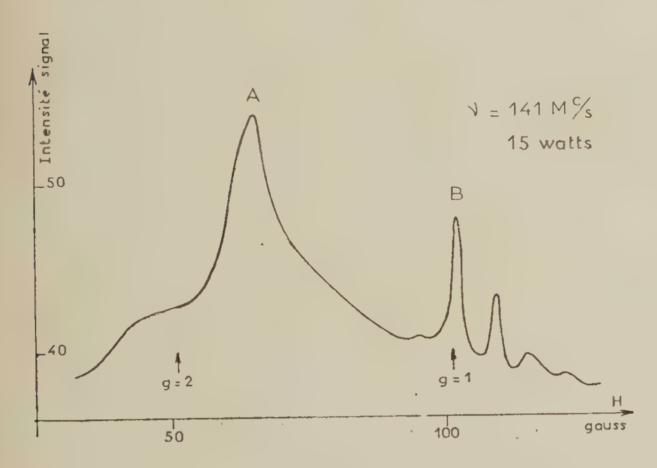


Fig. I,6. — *Résonances cyclotrons.*
(Le champ magnétique oscillant a une amplitude d'environ 0,5 gauss.)

observées, et elles se traduisent, non seulement par une variation du degré de polarisation, mais aussi de l'intensité lumineuse. La forme et l'amplitude de ces résonances dépendent en particulier de la vitesse des électrons, de la fréquence et de la répartition du champ oscillant. Elles sont donc liées aux propriétés dynamiques des électrons.

Résonance $g = 2$. — Elle s'observe pour des champs oscillants très faibles. — Puissance fournie $\leqslant$ 0,01 watt — sa largeur est alors d'environ 1 gauss. Lorsque la puissance augmente, elle s'élargit considérablement, se déplace et devient dissymétrique. Sa structure devient complexe (*fig.* I,6).

Ce phénomène est lié à la résonance cyclotron des électrons. Une étude du phénomène peut être faite en prenant des conditions idéales : le pinceau électronique n'est pas absolument parallèle au champ magnétique H_y et les électrons possèdent une légère vitesse radiale v_z. Leurs trajectoires sont alors des hélices d'axe Oz (*fig.* I,7). Ils sont soumis à un

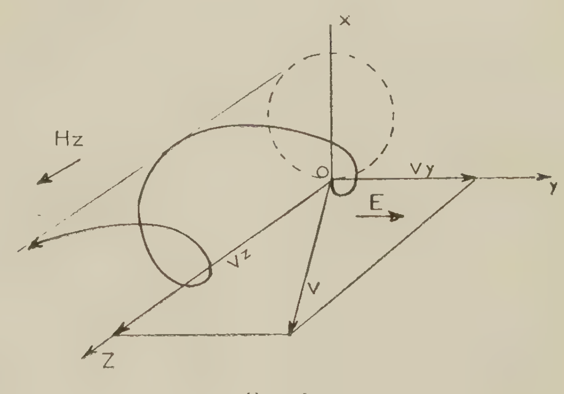


Fig. I,7.

champ électrique perpendiculaire à Oz. Dans ces conditions, l'énergie d'un électron donné est en général une fonction périodique du temps et la valeur moyenne au cours du temps de l'énergie d'un grand nombre d'électrons ne dépend que faiblement de la pulsation ω du champ oscillant. Pour la valeur particulière $\omega = \omega_c = eH/m$; l'énergie cinétique est au contraire une fonction parabolique du temps [1]. Cette valeur ω_c correspond au facteur de Landé $g = 2$. Dans notre expérience, cette augmentation d'énergie des électrons se traduit par une modification de l'intensité lumineuse totale, et également, d'après les courbes de polarisation (*fig.* I,2), par une modification du degré de polarisation.

L'inhomogénéité de vitesse, introduite d'une part par les imperfections de l'appareil et d'autre part par le fait que le champ oscillant électrique n'est qu'imparfaitement dirigé suivant Oy, complique l'interprétation précédente et nous attribuons à cet effet le déplacement de la résonance en fonction de l'amplitude du champ oscillant ainsi que sa structure complexe.

Résonance $g = 1$. — Elle n'apparaît que pour des puissances de haute fréquence assez intenses (5 watts dans nos expériences), et son aspect complexe dépend considérablement de la topologie du champ oscillant. Nous ne pouvons donner aucune interprétation simple de ces résonances que nous pensons être reliées aux inhomogénéités des champs de haute fréquence dans la région d'observation.

[1] Un calcul analogue est fait dans le cas particulier $v_y = 0$, $v_z = 0$ par Buchsbaum [38]. Il se généralise facilement.

Ces différentes résonances sont des phénomènes parasites très gênants et les distorsions considérables qu'elles provoquent, rendent impossible l'étude des résonances magnétiques dans leur voisinage. Nous avons essayé, expérimentalement en agissant sur les différents paramètres, d'en diminuer l'importance. L'influence de la fréquence ν du champ oscillant s'est révélée très grande. Pour un tube donné, l'amplitude des résonances cyclotron diminue à puissance égale lorsque la fréquence diminue. A 50 Mc/s, en particulier, elles sont pratiquement inexistante dans le tube n° 1. Dans ces conditions, le temps de transit t d'un électron entre la cathode et la plaque devient plus petit qu'une période $1/\nu$. L'électron est alors soumis au champ oscillant pendant un temps inférieur à celui nécessaire pour décrire une orbite complète autour du champ magnétique et sa variation d'énergie est par suite très faible.

Ce résultat nous a conduits à réaliser des tubes électroniques du type n° 2 où la distance l est plus petite ($l = 4$ mm) et la section du pinceau est beaucoup plus importante. En outre, le champ magnétique oscillant est produit par un système de bobines extérieures qui créent une répartition de champ électrique radiale beaucoup moins favorable aux résonances cyclotrons. Les résonances cyclotrons deviennent alors très faibles — équivalentes à une variation du degré de polarisation de 0,3 % dans les cas des plus défavorables — jusqu'à une fréquence de 300 Mc/s. Aucune distorsion n'est alors produite sur les résonances dont le facteur de Landé est différent de 1 ou 2.

III. Identification des résonances magnétiques. — En isolant les différentes raies du spectre il apparaît des résonances pour certaines d'entre elles (raies 2 537, 3 651, 5 460, 6 123 Å en particulier) Ces résonances se traduisent uniquement par un changement du degré de polarisation de la raie et sont spécifiques d'états excités particuliers. Elles ont été identifiées comme étant réellement des résonances magnétiques.

L'identification s'est révélée difficile : l'emploi d'un monochromateur à prisme pouvant séparer les différentes raies de l'élément étudié impose l'emploi d'une fente d'entrée fine, et par suite des dimensions du pinceau électronique, une très faible quantité de la lumière émise peut être utilisée. Ce montage a été utilisé pour certaines raies intenses en décelant les résonances uniquement par le changement d'intensité de la lumière π. Le signal de résonance est faible et les fluctuations d'intensité ne sont pas éliminées comme avec le montage en pont. L'étude précise de la résonance n'est pas possible. Nous avons donc, en général, isolé les raies à l'aide de filtres colorés ou de filtres interférentiels.

Raie 2 535 Å. — La radiation $6\,^3P_1 — 6\,^1S_0$ (2 537 Å) est facile à isoler, elle apparaît dès que les électrons ont une énergie de 4,86 électron-volts, et le maximum de polarisation est atteint pour une énergie d'environ 7 eV [1]. Dans ces conditions, aucune autre raie n'est excitée avec une intensité appréciable.

Malgré la présence fort gênante des résonances cyclotrons, nous avons, dès le début de notre travail, recherché sur le tube n° 1 la résonance du niveau $6\,^3P_1$; nous l'avons décelée avec un mauvais rapport signal/bruit sur l'aile de la résonance cyclotron $g = 2$. Les résultats détaillés ont été publiés [18]. Cependant si cette expérience nous a montré les possibilités de la méthode, malgré tous nos efforts, il nous a été impossible d'obtenir une précision suffisante pour vérifier, par comparaison avec les résultats de J. Brossel, qu'aucune erreur systématique n'était introduite dans nos mesures. Une autre technique a été employée à cet effet et sera décrite ultérieurement.

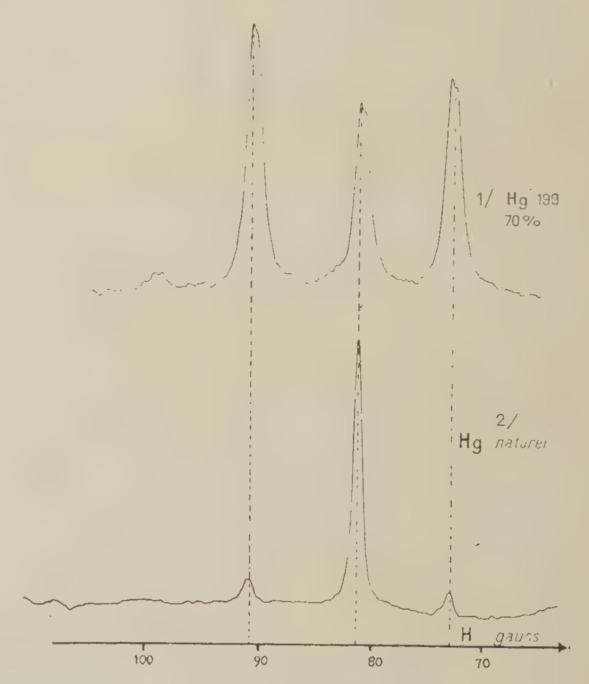


Fig. I,8. — *Résonance magnétique du niveau* $6\,^3F_4$. Mercure naturel et mercure enrichi en isotope 199 (70 %). $\nu = 142$ Mc/s.

Transitions $6\,^3D_3 — 6\,^3P_2$, $6\,^3D_2 — 6\,^3P_2$, $6\,^3D_1 — 6\,^3P_2$ (3 651, 3 654, 3 664 Å). — L'étude spectroscopique nous a montré que ces trois transitions sont très intenses, et en particulier, la raie $6\,^3D_3 — 6\,^3P_2$. Ces raies sont isolées du reste du spectre : soit à l'aide d'un monochromateur

(1) En réalité, ce maximum est obtenu en appliquant environ 8 volts sur l'anode par suite du potentiel d'extraction de la cathode (cf. *fig. I-2b*).

Jobin-Yvon ; soit à l'aide d'un filtre Corning 9863, qui, associé au verre de l'optique, ne laisse passer que la bande 3 200 Å-4 000 Å.

Sur cet ensemble de raies, nous avons observé, dans le cas du mercure naturel, une résonance intense correspondant au facteur de Landé $g = 1,247$, et deux, plus faibles, correspondant à $g = 1,110$ et $g = 1,390$. Ces deux dernières sont liées à l'isotope 199, comme l'a montré l'étude d'un échantillon enrichi (*fig.* I,8).

Sur les raies jaunes $6\ ^3D_2 — 6\ ^1P_1$, $6\ ^3D_1 — 6\ ^1P_1$, $6\ ^1D_2 — 6\ ^1P_1$, isolées au moyen d'un filtre interférentiel, aucune résonance n'apparaît. Les résonances précédentes ne peuvent pas être celles des niveaux $6\ ^3D_2$ et $6\ ^3D_1$, mais doivent être reliées au niveau $6\ ^3D_3$.

Les valeurs théoriques du facteur de Landé de ce niveau sont 1,33 (isotopes-pairs) et 1,139 et 1,520 (mercure 199). Dans le cas des isotopes pairs, la détermination de P. Jacquinot [39] est en parfait accord avec la valeur théorique. Il n'y a aucune concordance avec nos résultats. En outre, la durée de vie, déduite de l'étude de la largeur de nos courbes de résonance, conduit à $\tau \# 4.10^{-7}$ sec., en désaccord avec la valeur $\# 10^{-8}$ sec. donnée par Skinner [23].

Les atomes excités se trouvant dans l'état $6\ ^3F_4$ ne peuvent retomber par la transition infra-rouge $6\ ^3F_4 — 6\ ^3D_3$ ($\lambda = 17\ 190$ Å) que dans l'état $6\ ^3D_3$. Toute différence de population dans le niveau $6\ ^3F_4$ créera, par le jeu des probabilité de transition, une différence de population dans les sous-niveaux magnétiques de $6\ ^3D_3$. La résonance magnétique du niveau $6\ ^3F_4$ provoquera donc, non seulement une variation de population de $6\ ^3F_4$, mais aussi de $6\ ^3D_3$, et par suite une modification du taux de polarisation de la raie $6\ ^3D_3 — 6\ ^3P_2$.

Les facteurs de Landé trouvés pour les résonances précédentes sont en parfait accord avec les valeurs théoriques, dans le cas du couplage LS, calculées pour le niveau $6\ ^3F_4$ $g = 1,25$ (isotopes pairs), $g = 1,111$ et $g = 1,3888$ (isotope 199). Cette hypothèse, en outre, a été pleinement vérifiée par l'interprétation des résultats expérimentaux sur le découplage IJ dans le cas des isotopes 199 et 201.

Nous avons tenté l'étude directe de la transition $6\ ^3F_4 — 6\ ^3D_3$ en prenant comme récepteur une cellule à sulfure de plomb. En opérant dans les conditions les plus favorables (jet électronique modulé à 25 c/s, amplification sélective du courant cellule, détection synchrone à longue constante de temps), le rapport signal/bruit correspondant à l'intensité globale des radiations infra-rouges de longueur d'onde supérieure à 10 000 Å, était de l'ordre de 15. Avec un signal aussi faible, il était impossible de déceler la résonance magnétique correspondant à un niveau particulier.

Étude des raies rouges. — Pour localiser une résonance trouvée parmi les différentes raies rouges du mercure, nous avons utilisé un filtre interférentiel « Baird » dont la courbe de transmission avait approximativement 20 Å de large. Cette bande pouvait être déplacée par rotation du filtre de 6 000 à 6 200 Å.

La résonance a été ainsi localisée sur la raie 6 123 Å $^1D_2 — 7\ ^3S_1$ où le niveau $^1D_2$ est un niveau de configuration $5d^9\ 6s^2\ 6p$. Elle se produit pour $g = 1,12$.

De nombreux niveaux de configuration $5d^9\ 6s^2\ 6p$ ont été mis en évidence dans le spectre du mercure. Ils correspondent à l'excitation de deux électrons, et l'énergie d'excitation de beaucoup d'entre eux est supérieure à l'énergie d'ionisation. Dans ce cas, ils ont été mis en évidence par des expériences sur les potentiels d'ultra-ionisation et par l'observation de raies dans l'ultra-violet lointain [40]. L'existence en particulier des radiations 6 123 Å et 15 295 ont conduit à admettre l'existence de niveaux $^1D_2$ et $^3P_2$, d'énergie inférieure au seuil d'ionisation, ayant cette configuration, et récemment l'hypothèse d'un niveau métastable $^3D_3$ a été faite [41].

Etude des raies bleues, violettes et vertes. — A l'aide de filtres, nous pouvons isoler les groupes de raies suivantes :

Filtre Wratten 77 A	raie 5 460 Å	$7\ ^3S_1 — 6\ ^3P_2$
Filtre Wratten 34 A	raies 4 358 Å	$7\ ^3S_1 — 6\ ^3P_1$
	4 347 Å	$7\ ^1D_2 — 6\ ^1P_1$
	4 339 Å	$7\ ^3D_2 — 6\ ^1P_1$
Iode à saturation dans CCl_4	raies 4 046 Å	$7\ ^3S_1 — 6\ ^3P_0$
	4 077 Å	$7\ ^1S_0 — 6\ ^3P_1$
	4 108 Å	$9\ ^1S_0 — 6\ ^1P_1$

La même résonance est décelée sur ces trois ensembles de raies et correspond, pour les isotopes pairs, au facteur de Landé $g = 1,440$. Pour l'isotope 199, nous avons trouvé une résonance pour $g = 1,150$. La durée de vie, déduite de la largeur des courbes de résonances des isotopes pairs, est d'environ 2.10^{-7} sec.

Il semblerait que cette résonance doit être attribuée au niveau $7\ ^3S_1$, le seul commun à ces trois groupes de raies ; mais pour ce niveau, $g = 2$, et la durée de vie est de l'ordre de 10^{-8} sec. [16]. Nous sommes conduits à attribuer la résonance à un niveau de configuration $^3P_2$ alimentant le niveau $7\ ^3S_1$.

En effet, le facteur de Landé d'un niveau de configuration $^3P_2$ est 1,5 pour les isotopes pairs, et s'il existe un léger désaccord avec la valeur expérimentale, l'accord est parfait pour le rapport g_F/g_J que nous avons déterminé dans le cas de l'isotope 199.

Il nous a été impossible de déterminer de façon plus précise ce niveau $^3P_2$. En effet, le niveau $7\ ^3S_1$

est alimenté en particulier par les différentes transitions :

$7\,^3P_2 - 7\,^3S_1$ 11 230 Å
$5d^9\,6s^2\,6p\,^3P_2 - 7\,^3S_1$ 15 295 Å

Ne possédant pas de récepteurs infra-rouges suffisamment sensibles, il nous est impossible, comme pour la raie $6\,^3F_4 - 6\,^3D_3$, d'étudier ces transitions.

Remarquons toutefois que l'écart du facteur de Landé avec celui déduit de l'hypothèse du couplage LS semble inexplicable dans le cas du niveau $7\,^3P_2$. Par contre, cet écart est vraisemblable dans le cas d'un niveau $5d^9\,6s^2\,6p\,^3P_2$ où une interaction est possible entre les différents états de cette configuration ayant le même J, leur énergie étant assez voisine.

Le taux de polarisation de la radiation 5 460 Å est nul, d'après les mesures de Skinner. Ceci montre que les différences de population créées par les deux processus : bombardement électronique et effet de cascade, se compensent. Ces effets de cascade ont donc une influence particulièrement importante, et le calcul des degrés de polarisation à partir de la théorie des collisions, sera donc en général inextricable.

IV. Problème posé par la détermination précise des facteurs de Landé et durées de vie. — Dans le paragraphe suivant, nous montrerons que la position d'une résonance peut être repérée avec une précision relative de $1{,}5.10^{-4}$. Il a été nécessaire de s'assurer qu'une telle précision n'est pas illusoire. En effet, les atomes soumis à la résonance magnétique se trouvent à quelques millimètres d'une cathode en nickel. Cette cathode est chauffée par effet Joule, et en outre la résonance magnétique se fait au sein d'un jet d'électrons se déplaçant dans le champ magnétique H. Nous avons fait les tests suivants, pour vérifier que, malgré ces éléments perturbateurs, le champ magnétique était, à la précision des mesures, celui déduit de l'étalonnage des bobines d'Helmholtz.

1) Nous déterminons la position d'une résonance avec le plus grand soin possible, deux fois de suite, le sens du courant de chauffage de la cathode étant permuté entre les deux mesures. Avec le type de chauffage décrit page 12, la variation relative de position d'une résonance pour un champ de 100 gauss est inférieure à 1/10 000. Le champ créé dans la région d'observation est donc inférieur à 5 milligauss.

2) Un tube électronique a été réalisé afin de faire, outre les expériences d'excitation électronique, la résonance magnétique du niveau $6\,^3P_1$ excité optiquement. A cet effet, la géométrie des électrodes permet l'illumination de la vapeur de mercure comprise entre la grille et la plaque suivant la direction Oy par la radiation 2 537 Å polarisée rectilignement en π. La détection est faite, comme pour l'excitation électronique, suivant OxOx'. D'après l'étalonnage du système de bobines, pour la fréquence ν, la résonance du niveau $6\,^3P_1$ doit avoir lieu pour un courant magnétisant i_0.

1° *Cathode froide.* — La résonance apparaît pour $i < i_0$, elle est extrêmement élargie et déformée. Nous attribuons ce désaccord à la perturbation du champ H_0 par le ferromagnétisme de la cathode en nickel, ce que confirme l'expérience avec cathode chaude.

2° *Cathode chaude.* — A la précision des mesures (3.10^{-4}), la résonance apparaît à i_0. La température de transition entre ce cas et le cas précédent semble correspondre à la température de Curie du nickel (400 °C).

3° *Cathode chaude et jet électronique.* — La résonance s'affaiblit, mais aucune perturbation dans sa position n'est notée.

Nous sommes ainsi assurés qu'aucune erreur systématique n'est faite sur la position des résonances.

Sensibilité du montage. Précision des mesures. — L'étude expérimentale des différentes résonances a comporté essentiellement la détermination de deux grandeurs : abscisse du centre de la résonance nous conduisant au facteur de Landé ; étude de la largeur limite correspondant à l'intensité nulle du champ de radiofréquence.

Ces deux grandeurs sont déduites du tracé des courbes de résonance dont la perfection est limitée par les fluctuations du courant anodique des photomultiplicateurs.

Pour améliorer les mesures malgré ces fluctuations, nous sommes amenés à diminuer au maximum l'amplification du photomultiplicateur et à prendre un galvanomètre très sensible et à longue constante de temps. Nous avons également essayé un ensemble de détection électronique, le champ magnétique étant modulé à 25 Hz, et en employant une détection synchrone. Une légère amélioration, à constante de temps égale, a été constatée, mais nous obtenons la dérivée de la courbe, et l'interprétation est difficile.

Dans les cas les plus favorables, une résonance peut être repérée au 1/100 de sa largeur, ce qui conduit, pour les champs magnétiques auxquels nous travaillons, à une précision relative d'environ $1{,}5.10^{-4}$. Des mesures en champ plus élevé nous conduiraient en principe à une détermination plus précise, mais leur résultat serait, par suite des découplages LS, d'une interprétation plus difficile.

Le champ magnétique, d'autre part, a été étalonné [7] en déterminant la position de la résonance du niveau $6\,^3P_1$ excité optiquement. Nous avons

pris, pour ce niveau, $g = 1{,}4838$. L'erreur sur l'abscisse de cette résonance nous conduit à une précision d'étalonnage du champ de $1{,}5 . 10^{-4}$.

D'autres phénomènes limitent la résolution de notre appareillage. En particulier, dans certains cas, la courbe apparaît sur un fond en pente résultant de plusieurs effets : variation du degré de polarisation en fonction du champ magnétique, influence du champ magnétique sur les photomultiplicateurs, etc.... Nous éliminons ce fond par extrapolation lors du dessin des courbes.

Manuscrit reçu le 25 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] KOPFERMANN (H.), Adaptation anglaise de SCHNEIDER (E. E.), « Nuclear Moment », Academic Press Inc. Publishers.
[2] BROSSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 1213.
[3] KASTLER (A.), *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 255.
[4] KASTLER (A.), *J. Opt. Soc. Amer.*, 1957, **47**, 460.
[5] CAGNAC (B.), BROSSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 1827.
[6] BROSSEL (J.) et BITTER (F.), *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 311.
[7] BROSSEL (J.), *Thèse*, Paris, 1952 ; *Ann. Physique*, 1952, **7**, 622.
[8] SAGALYN (P. L.), MELISSINOS (A. C.) et BITTER (F.), *Phys Rev.*, 1958, **109**, 375.
[9] BOCKMANN (K.), KRUGER (H.) et RECKNAGEL (E.), *Ann. Physique*, 1957, **20**, 250.
[10] SAGALYN (P. L.) *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 885.
[11] ALTHOFF (K.) et KRUGER (H.), *Naturw.*, 1954, **41**, 368.
[12] KRUGER (H.) et MEYER-BERKHOUT (U.), *Naturw.*, 1955, **42**, 94.
[13] RITTER (C. J.) et SERIES (G. W.), *Proc. Roy. Soc*, 1957, A **238**, 473.
[14] BARRAT (J. P.) et BROSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2744.
[15] KOHLER (R. H.), Quaterly Progress Report Research Laboratory of electronics, Massachusetts Institute of Technology, 15 janvier 1958, p. 39.
[16] BROSSEL (J.) et JULIENNE (Mlle C.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 2127.
[17] BLAMONT (J.), Communication privée.
[18] PEBAY-PEYROULA (J. C.), BROSSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 57.
[19] PEBAY-PEYROULA (J. C.), BROSSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 840.
[20] DESCOUBES (J. P.) et PEBAY-PEYROULA (J. C.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **247**, 2330.
[21] KOSSEL et GERTHSEN, *Am Physik*, 1925, **77**, 275.
[22] ELLETT, FOOTE et MOHLER, *Phys. Rev.*, 1926, **27**, 31.
[23] SKINNER, *Proc. Roy. Soc.*, 1926, A **112**, 642.
[24] ELDRIDGE et OLSON, *Phys. Rev.*, 1926, **28**, 1151.
[25] QUARDER, *Z. Physik*, 1927, **41**, 674.
[26] SKINNER et APPLEYARD, *Proc. Roy. Soc.*, 1928, A **117**, 224.
[27] STEINER, *Z. Physik*, 1929, **52**, 516.
[28] LAMB (W. E.), *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 559.
[29] MASSEY (H. S. W.) et MOISEIWITSCH, *Proc. Roy. Soc.*, 1951, A **205**, 483.
[30] MOISEIWITSCH (B. L.), *Proc. Roy. Soc.*, 1953, A **219**, 102.
[31] MASSEY (H. S. W.) et MOISEIWITSCH, *Proc. Roy. Soc.*, 1955, A **227**, 38.
[32] MILLER (W. F.) et PLATZMAN (R. L.), *Proc. Phys. Soc.*, 1957, A **70**, 299.
[33] SEATON (M. J.), Communication privée.
[34] PERCIVAL (I. C.) et SEATON (M. J.), Philosophical Transactions of the Royal Society, 1958, A **251**, 113.
[35] DEHMELT (H. G.), *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 1125.
[36] AUBREY (B. B.) et BRADLEY (L. C.), Quartely Progress Report, Res. Lab. Elec. M. I. T., 15 juillet 1957, p. 39, 15 octobre 1957, p. 22, 15 juillet 1958, p. 30.
[37] LAMB (W. E.) et MAIMAN (T. H.), *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 573.
[38] BUCHSBAUM (S. J.), Quartely Progress Report, Res. Lab. Elec. M. I. T., 15 janvier 1958, p. 8.
[39] JACQUINOT, *Thèse*, Paris, 1937 ; *Ann. Physique*, 1938, **9**, 236.
[40] SHENSTONE (A. G.), *Phys. Rev.*, 1931, **38**, 873.
[41] LICHTEN (W.), *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 1191.

ÉTUDE DU MOUVEMENT BROWNIEN DE ROTATION DE MACROMOLÉCULES EN CHAINE

Par PHILIPPE WAHL,
Centre de Recherches sur les Macromolécules, Strasbourg (France).

Résumé. — On étudie le mouvement brownien de rotation d'une molécule formée de n chaînons rigides librement articulés les uns aux autres. On donne notamment pour $n = 2$ et $n = 3$ les expressions des carrés moyens des déplacements angulaires des chaînons pendant un intervalle de temps Δt.

Abstract. — Study of the rotational Brownian movement of a chain molecule consisting of n rigid links freely rotating. Expressions are given in particular, in the case $n = 2$ and $n = 3$, for the mean square angular displacement of a link during the time interval Δt.

I. Introduction. — On admet en général que lorsque l'on a affaire à une substance fluorescente en solution, les oscillateurs qui absorbent une lumière excitatrice donnée et ceux qui la réémettent sous forme de lumière de fluorescence, sont linéaires et possèdent une position bien déterminée dans la molécule.

Depuis les travaux de F. Perrin [1] on sait que par suite de l'agitation thermique les oscillateurs peuvent tourner entre le moment de l'absorption et celui de la réémission, ce qui entraîne une dépolarisation supplémentaire de la lumière émise. Pour des molécules rigides sensiblement plus grandes que celles du solvant les rotations obéissent aux lois du mouvement brownien et F. Perrin [1, 2] a pu relier la dépolarisation de la lumière de fluorescence aux constantes de diffusion de rotation des molécules en solution. Cette théorie a été appliquée avec succès à certaines protéines globulaires au point isoionique et a permis de retrouver leurs dimensions [3, 4].

Dans d'autres conditions expérimentales on ne peut plus considérer ces molécules comme rigides et on a émis l'hypothèse qu'elles sont formées de deux parties articulées l'une par rapport à l'autre [4]. Cette hypothèse est voisine de celle que l'on est conduit à formuler quand on veut étudier les polymères portant des groupes fluorescents fixés au squelette de la chaîne [5].

Nous avons donc étudié le mouvement brownien d'un modèle simple qui permette le calcul et grâce auquel il sera possible d'essayer d'interpréter les résultats obtenus sur la fluorescence des molécules flexibles.

Nous considérerons des molécules formées de n chaînons rigides librement articulés les uns par rapport aux autres. Un chaînon sera supposé grand par rapport aux molécules du solvant et nous lui appliquerons les lois du mouvement brownien. Pour simplifier encore le problème, nous supposerons une chaîne plane effectuant ses mouvements dans le plan ; nous négligerons les interactions hydrodynamiques entre chaînons.

Nous nous bornerons dans ce travail à calculer le carré moyen d'un petit déplacement angulaire d'un chaînon quelle que soit sa place dans la chaîne. Ceci nous donnera une constante de diffusion de rotation instantanée correspondant à une configuration donnée de la chaîne et à une position déterminée d'un élément dans la molécule. On passera de nos résultats à l'interprétation des données expérimentales en faisant une moyenne des configurations de la chaîne en solution.

Remarquons que ces résultats pourraient être appliqués au problème de l'absorption diélectrique des solutions de hauts polymères. Il suffirait de remplacer l'oscillateur fluorescent par un moment dipolaire électrique permanent.

II. Évaluation de l'énergie cinétique. — Un chaînon est constitué par une barre rigide de longueur a et la matière est supposée localisée aux extrémités des chaînons sous forme de boules d'égale grosseur. Le diamètre des boules étant petit devant la longueur du chaînon les forces de frottement dues à la rotation des boules sur elles-mêmes seront négligées.

Les axes de coordonnées de directions fixes auront pour origine le centre de gravité G, et il suffira d'étudier le mouvement du système autour de ce point. Si $\theta_1 \ldots \theta_n$ sont les angles des chaînons avec la direction Ox, on calculera les coordonnées x_0, y_0 ... x_n, y_n des boules au moyen des $2n + 2$ relations

$$x_1 - x_0 = a \cos \theta_1 \qquad y_1 - y_0 = a \sin \theta_1$$

$$x_n - x_{n-1} = a \cos \theta_n \qquad y_n - y_{n-1} = a \sin \theta_n$$

$$\sum_0^n x_i = \sum_0^n y_i = 0.$$

Par dérivation totale des $(x_i\, y_i)$ par rapport au temps t on obtiendra les composantes des vitesses $(\dot{x}_i, \dot{y}_i)$ en fonction des θ_p et $\dot{\theta}_p$ que l'on portera dans l'expression de l'énergie cinétique. Les $\dot{\theta}_p$ sont les vitesses angulaires. Désignons par K l'énergie cinétique. Par définition :

$$K = \frac{m}{2} \sum_0^n (\dot{x}_i^2 + \dot{y}_i^2)$$

m étant la masse d'une boule.

On obtient

$$K = \frac{ma^2}{2(n+1)} \sum_{p=1}^n \sum_{q=1}^n a_{pq}\, \dot{\theta}_p\, \dot{\theta}_q \qquad (1)$$

avec $a_{pq} = p(n + 1 - p)$

$$a_{qp} = a_{pp} = q(n + 1 - p) \cos(\theta_p - \theta_q) \text{ pour } p > q.$$

III. **Équations du mouvement.** — Fixons maintenant notre attention sur une configuration donnée de la molécule, définie par les valeurs $\theta_1 \ldots \theta_n$ et considérons les petits mouvements autour de cette configuration, dus à l'agitation moléculaire. Nous pouvons poser que les vitesses sont très petites, si bien que l'on peut considérer dans la théorie des petits mouvements [6] que les a_{pq} sont constants.

Dans ces conditions les n équations du mouvement s'écrivent :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\left(\frac{\partial K}{\partial \dot{\theta}_p}\right) = Q_p + L_p \qquad p = 1 \ldots n \qquad (2)$$

L_p représente la contribution des forces aléatoires.

Q_p représente celle des forces de frottement

$$Q_p = \sum_{i=0}^n X_i \frac{\partial x_i}{\partial \theta_p} + Y_i \frac{\partial y_i}{\partial \theta_p}$$

X_i et Y_i sont les composantes de la résultante des forces de frottement sur la boule i. Si f est le coefficient de frottement de translation d'une telle boule, on a

$$X_i = -f\dot{x}_i$$
$$Y_i = -f\dot{y}_i.$$

De plus on a les relations bien connues (systèmes holonomes)

$$\frac{\partial x_i}{\partial \theta_p} = \frac{\partial \dot{x}_i}{\partial \dot{\theta}_p}$$
$$\frac{\partial y_i}{\partial \theta_p} = \frac{\partial \dot{y}_i}{\partial \dot{\theta}_p}.$$

Il en résulte

$$Q_p = -f\left[\sum_i^n \dot{x}_i \frac{\partial \dot{x}_i}{\partial \dot{\theta}_p} + \dot{y}_i \frac{\partial \dot{y}_i}{\partial \dot{\theta}_p}\right] = -\frac{f}{m}\frac{\partial K}{\partial \dot{\theta}_p}.$$

D'où l'expression des équations (2)

$$\frac{\mathrm{d}\lambda_p}{\mathrm{d}t} + \frac{f}{m}\lambda_p = L_p \qquad \lambda_p = \frac{\partial K}{\partial \dot{\theta}_p}. \qquad (3)$$

En effectuant les dérivations, ces mêmes équations s'écrivent :

$$\sum_{p=1}^n a_{pq}\, u_p = \frac{n+1}{ma^2} L_q$$
$$q = 1 \ldots n \qquad (4)$$
$$u_p = \left(\ddot{\theta}_p + \frac{f}{m}\dot{\theta}_p\right)$$

(4) constitue un système linéaire en

$$u_p = \ddot{\theta}_p + f/m\, \dot{\theta}_p.$$

Résolvons ce système par rapport à u_p et soit D_n le déterminant du système et A_{pq} le cofacteur de a_p dans le développement de D_n ; on a les équations du mouvement sous la forme :

$$\ddot{\theta}_p + \frac{f}{m}\dot{\theta}_p = \frac{n+1}{ma^2}\sum_{q=1}^n \frac{A_{pq} L_q}{D_n} \qquad p = 1 \ldots n. \qquad (5)$$

IV. **Calcul des carrés moyens des déplacements élémentaires.** — Soit $\Delta\theta_p$ le déplacement angulaire du $p^{\text{ième}}$ chaînon effectué pendant le temps Δt très court ; nous sommes maintenant capables de calculer les moyennes $\overline{\Delta\theta_p^2}$ et $\overline{\Delta\theta_b\, \Delta\theta_p}$ prises sur toutes les molécules de même configuration.

Pour une justification plus complète des calculs qui suivent, nous renverrons le lecteur à F. Perrin [7]. Nous diviserons l'intervalle Δt en N intervalles δt égaux. Intégrons alors pendant ce temps la $p^{\text{ième}}$ et la $q^{\text{ième}}$ équation du système (3) :

$$\lambda_p^1 = \lambda_p^0 - \frac{f}{m}\lambda_p^0\, \delta t + L_p \qquad (6)$$

$$\lambda_q^1 = \lambda_q^0 - \frac{f}{m}\lambda_q^0\, \delta t + L_q \qquad (7)$$

avec

$$L_p = \int^{\delta t} L_p\, \mathrm{d}t \quad \text{et} \quad L_q = \int^{\delta t} L_q\, \mathrm{d}t.$$

Élevons les deux membres de (6) au carré et prenons les moyennes sur toutes molécules de la configuration considérée. On trouve alors, en introduisant les hypothèses normales du mouvement brownien

$$\overline{L_p^2} = \frac{2f\overline{(\lambda_p^0)^2}\, \delta t}{m}.$$

De même multiplions les premiers membres et les seconds membres entre eux de (6) et (7) on obtient

$$L_p\, L_q = \frac{2f\, \overline{\lambda_q^0\, \lambda_p^0}\, \delta t}{m}.$$

Or on peut écrire

$$\overline{\lambda_p^2} = \lambda_p \overline{\left(\sum_q a_{pq}\, \dot{\theta}_q\right)} = \sum_q a_{pq}\, \overline{\lambda_p\, \dot{\theta}_q}$$

$$\lambda_p\, \lambda_q = \sum_r a_{qr}\, \lambda_p\, \dot{\theta}_r.$$

D'après le théorème d'équipartition

$$\overline{\lambda_p \dot{\theta}_q} = 0 \qquad p \neq q$$

$$\overline{\lambda_p \dot{\theta}_p} = kT.$$

On trouve donc finalement

$$\overline{L_p^2} = \frac{2fa_{pp}\, kT\, \delta t}{m}$$

$$\overline{L_p\, L_q} = \frac{2fa_{pq}\, kT\, \delta t}{m}.$$

Calculons maintenant le déplacement $\delta\theta_p$ total résultant des chocs se produisant dans l'intervalle δt. Il s'obtient en intégrant la $p^{\text{ième}}$ équation du système (5) et on trouve

$$\delta\theta_p = \frac{n+1}{a^2 f} \sum_1^n \frac{A_{pq}\, L_p}{D_n}. \tag{6}$$

On en déduit en élevant au carré

$$\delta\theta_p^2 = \left(\frac{n+1}{a^2 f}\right)^2 \sum_1^n \frac{(A_{pq})^2 + L_p^2 + 2\sum_i^n \sum_i^n A_{pq}\, A_{pr}\, L_q\, L_r}{D_n^2}$$

Les équations du mouvement étant linéaires, on a

$$\Delta\theta_p = \sum_{i=1}^{i=N} (\delta\theta_p)_i$$

$(\delta\theta_p)_i$ étant le déplacement total qui serait effectué sous l'action des chocs moléculaires se produisant durant le $i^{\text{ième}}$ instant δt. Ces déplacements étant indépendants les uns des autres on a par élévation au carré et prenant la moyenne sur toutes les molécules de configuration donnée

$$\overline{\Delta\theta_p^2} = \sum_{i=1}^{N} \overline{(\delta\theta_p^2)_i} = N\, \overline{\delta\theta_p^2}$$

$$\overline{\Delta\theta_p\, \Delta\theta_q} = \sum_{i=1}^{N} \overline{(\delta\theta_p\, \delta\theta_q)_i} = N\, \overline{\delta\theta_p\, \delta\theta_q}$$

et comme $\Delta t = N\, \delta t$ on aura

$$\overline{\Delta\theta_p^2} = \frac{2(n+1)}{a^2 f} \sum_{i=1}^{n} \frac{a_{qq}(A_{pq})^2 + 2\sum_1^n \sum_1^n a_{qr}\, A_{pq}\, A_{pr}}{D_n^2} . kT\, \Delta t.$$

On peut écrire l'expression entre crochets sous la forme

$$\sum_{q=1}^{n} A_{pq} \left[\sum_{r=1}^{n} a_{qr}\, A_{pr} \right]$$

qui se réduit d'après les propriétés des déterminants à

$$A_{pp}\, \Sigma\, a_{pq}\, A_{pq} = A_{pp}\, D_n$$

D'où finalement

$$\overline{\Delta\theta_p^2} = \frac{2(n+1)}{a^2 f} \frac{A_{pp}}{D_n} kT . \Delta t. \tag{7}$$

Par un calcul semblable on trouve

$$\overline{\Delta\theta_p\, \Delta\theta_q} = \frac{2(n+1)}{a^2 f} \frac{A_{pq}}{D_n} kT . \Delta t \tag{8}$$

Les expressions (7) et (8) peuvent s'obtenir en posant que les déplacements aléatoires,

$$\Delta\theta_1 \ldots \Delta\theta_p \ldots \Delta\theta_n,$$

ont une densité de probabilité obéissant à une loi de Laplace-Gauss à n dimensions [9] qui s'écrit

$$W(\Delta\theta_1, \ldots \Delta\theta_p, \ldots \Delta\theta_n) = \frac{(B)^{1/2}}{(2\pi)^{\frac{n}{2}}} \exp. - 1/2 \sum_1^n \sum_1^n b_{pq}\, \overline{\Delta\theta_p\, \Delta\theta_q}$$

avec

$$b_{pq} = \left(\frac{a^2 f}{2(n+1)\, kT\, \Delta t}\right)^n . D_n.$$

On peut expliciter ces formules pour les petites valeurs de n. Pour $n = 1$ par exemple on trouve :

$$\overline{\Delta\theta^2} = \frac{4\, kT}{a^2 f} \Delta t.$$

C'est la formule relative à une haltère rigide [8] qui a été déjà donnée par Kuhn. Pour $n = 2$ on obtient :

$$\overline{\Delta\theta_1^2} = \overline{\Delta\theta_2^2} = \frac{12\, kT . \Delta t}{a^2 f (4 - \cos^2(\theta_2 - \theta_1))}$$

$$\overline{\Delta\theta_1\, \Delta\theta_2} = - \frac{6 \cos(\theta_2 - \theta_1)\, kT . \Delta t}{a^2 f [4 - \cos^2(\theta_2 - \theta_1)]}$$

et pour $n = 3$

$$\overline{\Delta\theta_1^2} = \frac{4[3 - \cos^2(\theta_3 - \theta_2)]\, kT . \Delta t}{a^2 f [4 - \cos^2(\theta_2 - \theta_1) - \cos^2(\theta_3 - \theta_2)]}$$

$$\overline{\Delta\theta_2^2} = \frac{[9 - \cos^2(\theta_3 - \theta_1)]\, kT . \Delta t}{a^2 f [4 - \cos^2(\theta_2 - \theta_2) - \cos^2(\theta_3 - \theta_2)]}.$$

Lorsque n devient grand les calculs deviennent inextricables ; il serait intéressant de trouver une loi asymptotique valable quand n devient grand.

Manuscrit reçu le 6 février 1959.

RÉFÉRENCES

[1] Perrin (F.), *Ann. Physique*, 1929, **12**, 169.
[2] Perrin (F.), *J. Physique Rad.*, 1936, **7**, 1.
[3] Weber (G.), *Biochem. J.*, 1952, **51**, 145.
[4] Weber (G.), *Biochem. J.*, 1952, **51**, 155.
[5] Wahl (Ph.), *J. Pol. Sc.*, 1958, **29**, 375.
[6] Appell (P.), Traité de Mécanique Rationnelle, Gauthiers-Villars, éditeur, p. 330.
[7] Perrin (F.), *J. Physique Rad.*, 1934, **5**, 497.
[8] Kuhn (W.), Kuhn (H.) et Buchner, Ergebnisse der exakten Naturwissenschaften, 1951.
[9] Fortet, Calcul des Probabilités, p. 113, C. N. R. S., éditeur.

POLARISATION DYNAMIQUE DU SILICIUM 29 A BASSE TEMPÉRATURE

Par J. COMBRISSON et I. SOLOMON,
Centre d'Études Nucléaires, C. E. A., Saclay.

Résumé. — La polarisation dynamique des noyaux de silicium 29 dans le silicium a été étudiée à la température de l'hélium liquide. Les résultats obtenus avec un échantillon particulier sont décrits ainsi que les dispositifs expérimentaux utilisés.

Abstract. — Dynamic polarization of nuclei of silicon 29 in silicon has been studied at liquid helium temperature. Experimental results and apparatus are described.

I. **Introduction.** — Le silicium peut être préparé avec un grand degré de pureté (moins de 10^{13} atomes d'impuretés par cm^3) ou avec un taux d'impuretés bien défini. Des atomes des éléments des colonnes III et V du tableau périodique, peuvent être substitués au silicium dans le réseau cristallin. Ayant trois ou cinq électrons de valence, ils seront accepteurs ou donneurs d'électrons. Les atomes donneurs utilisés sont P, As, Sb. Des études ont été faites sur des siliciums contenant d'autres impuretés : Li, Bi, Fe, Mn, Au, Cu... elles ont prouvé que les centres ainsi créés étaient complexes, se trouvaient liés à des imperfections du réseau et parfois associés à de l'oxygène occlus. Un centimètre cube de silicium (poids spécifique : 2,4) contient 5.10^{22} atomes de ^{28}Si (95,3 %) de spin nucléaire zéro, et $2,5.10^{21}$ atomes de ^{29}Si (4,7 %) de spin 1/2.

Dans le cas d'impuretés de P, As, Sb, quatre électrons forment des liaisons covalentes avec les Si voisins, le cinquième électron est soit lié par un potentiel électrostatique à l'ion donneur (à la température de l'hélium liquide) soit libre de se déplacer dans le réseau à la manière des électrons de conduction d'un métal (aux températures supérieures à $\simeq 10$ °K).

La mobilité de ces électrons à température ordinaire, traduite par une mesure de résistivité, donne une valeur du taux d'impuretés. Des formules empiriques souvent utilisées, sont les suivantes :

$$\text{Pour} \quad \rho > 10\ \Omega.\text{cm} \qquad N_d = \frac{10^{15}}{\rho}$$

$$\text{Pour} \quad \rho < 10\ \Omega.\text{cm} \qquad N_d = \frac{10^{15}}{\rho}\cdot\frac{1}{0,73 + 0,27 \log \rho}$$

où ρ est la résistivité, N_d le nombre d'atomes donneurs par cm^3.

S'il existe dans le cristal des atomes accepteurs (B, Al), un nombre correspondant d'électrons peut être piégé et aux basses températures, il peut exister des centres donneurs ayant perdu leur cinquième électron au profit des accepteurs.

Dans les échantillons que nous avons étudiés, le taux d'impuretés acceptrices reste faible devant celui des donneurs volontairement introduits. A la température de l'hélium liquide, l'ensemble de l'ion donneur et de l'électron peut, en première approximation, être considéré comme un atome hydrogénoïde dont le rayon de l'orbite de Bohr serait particulièrement grand par suite de la valeur élevée (11,7) de la constante diélectrique du silicium. Des calculs simples basés sur cette approximation donnent un bon ordre de grandeur pour interpréter les spectres de résonance électronique [1], [2].

II. **Étude du silicium dopé par résonance magnétique.** — 1) Résonance électronique. — Comme d'autres propriétés physiques, la résonance électronique présente des caractères différents aux basses températures où les électrons sont dans la bande de valence et aux températures plus élevées où ils sont dans la bande de conduction.

Au-dessus de 10 °K environ, il y a résonance due aux électrons de conduction : raie unique de forme de Lorentz (demi-largeur à mi-hauteur 4 gauss à 77 °K) [3].

Au-dessous de 10 °K et en particulier à 4,2 °K, il y a résonance due aux électrons des atomes hydrogénoïdes. Si les impuretés sont suffisamment diluées (concentration inférieure à $10^{18}/cm^3$), la résonance présente une structure hyperfine à $2I + 1$ raies où I est le spin de l'atome donneur : 2 raies pour le phosphore, 4 pour l'arsenic, 6 et 8 pour les deux isotopes de l'antimoine [4], [5]. La largeur de chacune des raies est due à l'interaction hyperfine de contact avec les noyaux de ^{29}Si voisins dont le nombre, par suite du grand diamètre de l'orbite de Bohr ($\simeq 50$ Å) est élevé ($\simeq 1\,000$). C'est une largeur de raie « inhomogène » [17] (demi-largeur à mi-hauteur 1,5 gauss) les différents centres paramagnétiques étant dans des champs locaux légèrement différents par suite de cette interaction hyperfine. Feher [6] a vérifié que la largeur est inhomogène en montrant qu'il est possible de

« creuser un trou » dans une raie en en saturant une partie seulement et qu'un échantillon appauvri en ^{29}Si présente des raies beaucoup plus fines (demi-largeur 0,12 gauss pour un silicium contenant 0,02 % de ^{29}Si et dopé avec 4.10^{16} P/cm^3). Par ailleurs, Gordon et Bowers [7] ont obtenu des échos de spins en hyperfréquences avec un silicium dopé au phosphore confirmant ainsi le caractère statique du champ local produit par les spins de ^{29}Si. Le caractère de raie inhomogène n'est pas absolu : Feher a montré qu'en saturant une portion de la raie de résonance électronique, on affecte au bout de quelques minutes le reste du spectre. Cette transmission retardée de la saturation correspond à un temps de diffusion des spins.

Il peut y avoir couplage d'échange entre deux spins électroniques appartenant à des impuretés voisines et cela se manifeste même pour des faibles concentrations (10^{16} à 10^{17} atomes d'impuretés par cm^3) par l'apparition de raies satellites [5], [8], [9]. Quand on augmente le dopage de 10^{16} à 10^{18} et au delà, les raies de structure hyperfine diminuent au profit de la raie satellite centrale et pour une certaine concentration (3.10^{18} P/cm^3) il ne reste qu'une raie étroite (demi-largeur 0,25 gauss) qui ensuite s'élargit par interactions entre les spins électroniques en devenant semblable à la raie des électrons de conduction (demi-largeur : 2,5 gauss environ à 4,2 °K).

Le temps de relaxation T_1 est une fonction de la température et du taux d'impuretés, il peut atteindre des dizaines de minutes à 1,5 °K et des concentrations de l'ordre de 10^{16} P/cm^3.

Nous citerons ici pour mémoire, des expériences qui ont pu être réalisées grâce à l'existence de ce temps T_1 élevé :

a) Double irradiation (technique E. N. D. O. R.) [10], [11], [12].

b) Maser à deux niveaux : il est possible de retourner l'aimantation des spins électroniques par un passage rapide adiabatique et d'obtenir ainsi un état de « température négative » pour ces spins qui peuvent alors fournir de l'énergie à un circuit accordé [6], [13].

c) Étude des processus de relaxation spin-réseau et spin-spin [2], [12], [14], [15].

d) Orientation nucléaire de l'arsenic 76 dans le silicium [16].

2) Appareillage utilisé pour l'observation de la résonance électronique. — Le spectromètre que nous utilisons est représenté schématiquement sur la figure 1 : la source U. H. F. est un klystron V 58 pouvant fournir 400 mW vers 9 000 MHz et dont la fréquence est stabilisée par une cavité de référence ou par la cavité expérimentale selon un dispositif classique.

L'échantillon est placé dans une cavité rectangulaire fixée au bout d'un guide de faible conductivité thermique plongé dans un vase Dewar à hélium lui-même entouré par un Dewar d'azote liquide.

Les conditions de couplage de la cavité au guide sont réglées à l'optimum de sensibilité par le choix de la fenêtre introduite entre guide et cavité. Le champ H_0 est modulé à 600 Hz et peut être balayé soit manuellement soit automatiquement par l'envoi d'une tension variable sur l'alimentation de l'électro-aimant (modèle Varian V 200). Le signal de résonance est détecté dans le bras 4 du pont U. H. F. qui contient un cristal 1N 23 connecté à un amplificateur sélectif suivi d'un dispositif de détection synchrone (lock-in) et d'un potentiomètre enregistreur. La dérivée de la courbe d'absorption ou de dispersion de l'échantillon est inscrite.

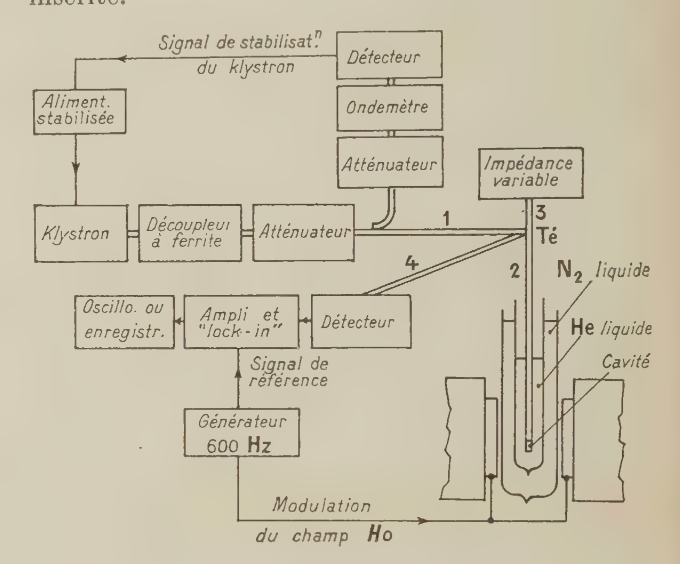


Fig. 1. — Schéma du spectromètre à résonance électronique.

Un système de récupération de l'hélium comprenant gazomètre et compresseur, permet de rendre au liquéfacteur 80 % de l'hélium utilisé. L'évaporation de l'hélium est due en majeure partie à la puissance U. H. F. dissipée dans la cavité. Pour une puissance dissipée de quelques milliwatts, l'hélium dure 6 à 8 heures à 4,2 °K (2 à 3 heures à 2 °K). Pour 200 mW l'hélium ne peut être conservé plus de 2 heures à 4,2 °K.

Dans le cas des échantillons de silicium peu dopés, si les temps T_1 sont longs, il y a saturation de la résonance électronique dès que la puissance U. H. F. dépasse quelques microwatts et la courbe d'absorption paramagnétique ne peut être observée qu'à l'aide d'un dispositif de réception hétérodyne. Cependant, pour des niveaux plus élevés de champ H_1 dans la cavité, il reste possible d'observer un signal de passage rapide en réglant l'appareillage pour observer la dispersion. La forme

de la raie enregistrée n'est pas toujours simple à interpréter car elle est de largeur inhomogène et par ailleurs les conditions du passage rapide adiabatique peuvent ne pas être rigoureusement satisfaites. Portis [17] et Feher [12] ont analysé les résultats ainsi obtenus.

Le spectre représenté sur la figure 2 est enregistré par cette méthode, c'est celui d'un silicium dopé au phosphore (5.10^{16} P/cm^3) à 4,2 °K. L'écart entre les deux raies est de 42 gauss et l'on peut voir un pic central dû aux contributions d'amas (clusters) de 2 atomes de phosphore voisins. La demi-largeur à mi-hauteur de chaque raie — compte tenu des corrections dues aux conditions expérimentales d'observation [22] — est 1,25 gauss. Le temps T_1 est 5 secondes.

3) Résonance nucléaire. — Aussi bien dans les études préliminaires de détermination des temps de relaxation nucléaire que dans les expériences finales de mesure des polarisations nucléaires obtenues, se pose le problème de la mesure de l'aimantation nucléaire. Cette mesure se fait à l'aide d'un spectromètre de résonance nucléaire. Le signal de l'isotope ^{29}Si (l'isotope principal ^{28}Si a un spin nul) est dans presque tous les cas observé dans un champ de 3 200 gauss à une fréquence de 2,8 MHz. Par suite des temps de relaxation du ^{29}Si extrêmement longs (T_1 (^{29}Si) = 5 min à 300 °K pour l'échantillon dont le spectre électronique est présenté dans la figure 2) la détection du signal se fait par passage rapide adiabatique [18, 19]. L'avantage de cette méthode est de donner directement un signal proportionnel en grandeur et en signe, à l'aimantation du ^{29}Si. Pour satisfaire la condition de passage adiabatique, malgré la fréquence de modulation assez basse employée (20 Hz), il faut néanmoins un champ H.F. d'intensité élevée (environ 1 gauss de composante tournante). Cette condition impose pratiquement l'emploi d'un spectromètre à bobines croisées que l'on règle sur le mode dispersion pour observer le signal de passage adiabatique.

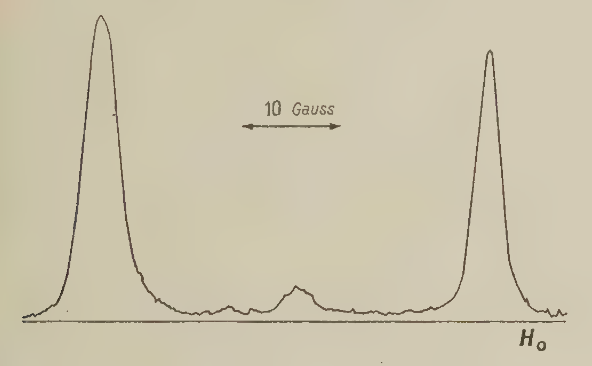


Fig. 2. — Spectre de résonance électronique d'un échantillon de silicium dopé au phosphore.

Le résultat de nos mesures des temps de relaxation nucléaire T_1, est indiqué ci-dessous. Pour un échantillon donné, le temps de relaxation varie peu de la température ordinaire à celle de l'azote liquide, mais croît considérablement à la température de l'hélium liquide. Une autre remarque que nous avons pu faire au cours de nos mesures est que le temps de relaxation est nettement plus court dans le champ du laboratoire (0,45 gauss) qu'en champ élevé. Pour l'échantillon déjà donné en exemple, nous avons les résultats suivants :

Concentration de phosphore 5.10^{16} centres/cm^3

T_1 à 300 °K en champ élevé : 5 minutes
T_1 à 77 °K en champ élevé : 9 minutes
T_1 à 4,2 °K en champ élevé : 19 heures (cf : plus loin : Étude du temps de polarisation naturelle)
T_1 à 300 °K en champ terrestre : 30 secondes.

III. **Polarisation dynamique du ^{29}Si.** — Nous avons fait des expériences de polarisation dynamique du ^{29}Si : Effet Overhauser [20] et Effet Solide [21] à deux températures, 77 °K et 4,2 °K. Ces expériences consistent essentiellement à irradier l'échantillon, pendant un certain temps, avec une puissance contrôlée d'hyperfréquence et à observer ensuite, par la mesure du signal de résonance nucléaire, la polarisation du ^{29}Si ainsi obtenue.

1) Expériences préliminaires. — On peut, grâce aux longs temps de relaxation nucléaire, séparer dans l'espace et dans le temps l'irradiation en hyperfréquence et la mesure de la polarisation obtenue. Cela permet de se placer pour les deux opérations dans des conditions optima. Nous avons brièvement décrit dans des publications précédentes [22], [23] les résultats acquis. L'irradiation est faite dans une cavité résonnant à 9 200 MHz sur un échantillon de silicium réduit en poudre, dans un champ H_0 de 3 300 gauss, à la température de l'azote liquide. La source U. H. F. est un magnétron de 5 watts. Après 30 minutes d'irradiation U. H. F., l'échantillon est retiré de la cavité et transporté dans un spectromètre à résonance nucléaire (Varian modèle 4 200 Å) où le signal est enregistré à la température ordinaire. Des précautions sont nécessaires pour éviter que l'échantillon ne séjourne trop longtemps en champ faible pendant le transfert d'un aimant à l'autre.

Dans cette expérience à la température de l'azote liquide, où les électrons ne sont pas liés (électrons de conduction) la polarisation dynamique obtenue par saturation de la raie de résonance électronique, devrait être celle prévue par Overhauser [20] et vérifiée par Carver et Slichter [24] dans le cas des métaux alcalins. L'accroissement de la polarisation nucléaire, par rapport à la polarisation d'équilibre, pour une saturation complète de la

raie électronique [25], [26] doit être dans ce cas : $-\gamma_e/\gamma_{Si} \simeq 3\,300$ où γ_e et γ_{Si} sont les rapports gyromagnétiques du spin électronique et du spin nucléaire. L'accroissement obtenu n'a en fait été que de $\simeq 100$, en bon accord avec le degré de saturation de la raie électronique obtenu par notre dispositif expérimental.

La même méthode (irradiation et observation séparées dans l'espace) a été utilisée en irradiant à la température de l'hélium liquide par un klystron. A cette température, les électrons sont liés et la raie présente une structure. On peut prévoir, ainsi qu'il est confirmé plus loin, qu'un effet solide se superpose à l'effet Overhauser, ce qui contribue à rendre les résultats des mesures peu reproductibles. Par ailleurs, la nécessité de retirer l'échantillon de l'hélium liquide introduit des difficultés d'interprétation (effet de passage en champ faible, effet de réchauffement de l'échantillon) aussi bien que l'ordre pratique : on est limité à un nombre très restreint de mesures (2 ou 3) au cours d'une journée. Pour une étude fine des effets de polarisation dynamique à la température de l'hélium liquide, nous avons donc été conduits à faire la mesure de polarisation *in situ*.

2) Mesures de polarisation dynamique *in situ*. — Le problème est donc de réaliser un système de détection de résonance nucléaire, à bobines croisées, qui puisse fonctionner à l'intérieur d'une cavité résonnante. Il faut par ailleurs que les bobines du spectromètre de résonance nucléaire perturbent assez peu la cavité (accord, facteur de qualité Q, etc...) et ne fasse pas écran pour les U. H. F., pour que l'échantillon de silicium puisse être soumis à un champ magnétique d'hyperfréquence suffisant. Le tout doit fonctionner dans un bain d'hélium liquide.

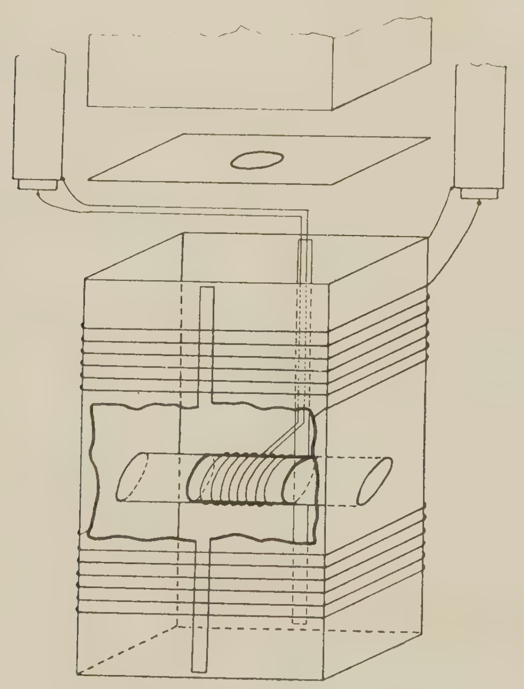


Fig. 3. — Cavité et bobinages utilisés pour la double irradiation.

La réalisation pratique est schématiquement représentée sur la figure 3. Le principe du dispositif est le suivant : la bobine réceptrice, qui détecte le signal nucléaire, se trouve à l'intérieur de la cavité. Pour éviter le blindage du champ magnétique H. F. (produit par la bobine émettrice) par la cavité, celle-ci est fendue le long d'une ligne de courant. La bobine réceptrice est composée de quelques tours de fil fin (1/10 mm) et l'expérience a montré que l'effet de blindage qu'elle produit sur l'échantillon est négligeable. Le détail du dispositif est le suivant :

a) *Échantillon.* — A 4,2 °K la résistivité du silicium est très grande, il n'y a donc pas lieu de réduire l'échantillon en poudre. On agglomère plusieurs morceaux en un cylindre avec de la vaseline, qui fait un bon ciment à basse température. Le cylindre est rendu rigide et de longueur convenable par l'adjonction d'extrémités en téflon et d'une enveloppe de polythène adhésif. Il est placé au centre de la cavité rectangulaire et est calé par de la mousse de polystyrène.

b) *Cavité.* — Elle est en laiton aminci (5/10 mm) et résonne sur le mode TE_{012}. Le couplage entre guide et cavité est choisi de façon à adapter cette dernière, ce qui rend le champ U. H. F. au centre maximum. Pour réduire les pertes en hélium liquide le guide est en laiton aminci (2/10 mm) et les coaxiaux d'amenée aux bobines émettrice et réceptrice, sont en monel (conducteur extérieur) et en laiton (conducteur central).

c) *Étude de la résonance électronique.* — Le spectrographe décrit précédemment, sert à étudier le spectre de résonance électronique de l'échantillon. On peut le modifier légèrement de façon à pouvoir fournir plus de puissance U. H. F. dans la cavité, tout en restant capable de tracer des raies de résonance électronique avec un rapport signal sur bruit de 10.

d) *Spectromètre de résonance nucléaire.* — L'ensemble de deux bobines émettrice et réceptrice forme un spectromètre de résonance nucléaire fonctionnant à une fréquence d'environ 2,8 MHz. Par suite de la proximité des parois de la cavité, ces bobines sont à assez basse impédance (capacité d'accord aux environs de 1 000 pF). La puissance transmise dans la bobine émettrice ($\simeq 1,5$ watt) produit dans l'échantillon, un champ magnétique H. F., dont l'intensité n'est pas suffisante pour satisfaire la condition de passage adiabatique

et la polarisation nucléaire est annulée après passage sur le signal de ^{29}Si. L'orthogonalité grossière des bobines émettrice et réceptrice est d'abord réalisée mécaniquement. La compensation complémentaire est réalisée électroniquement à l'extérieur de l'aimant par le circuit de la figure 4. Ce montage

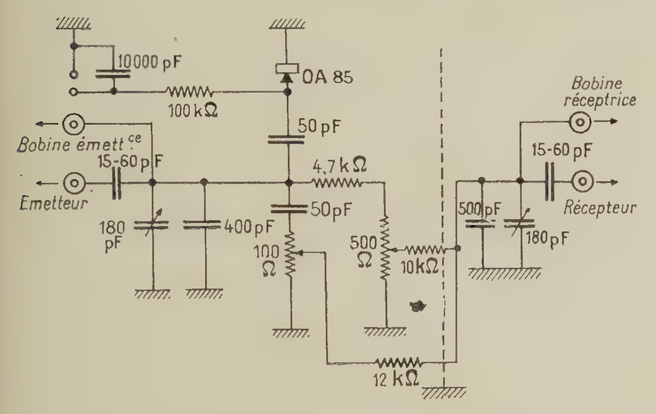


Fig. 4. — Circuit de compensation.

s'est révélé très stable et assez pratique d'emploi : l'orthogonalité des réglages de dispersion et d'absorption est réalisée, et la compensation est sensiblement indépendante des variations de fréquence. Le champ magnétique H_0 est modulé à 20 Hz et le signal de résonance nucléaire est détecté par démodulation cohérente (lock-in). La sensibilité de l'appareil est suffisante pour mesurer le signal du ^{29}Si à 77 °K (rapport signal/bruit d'environ 5).

Une mesure de polarisation dynamique se fait en deux temps :

a) Temps d'irradiation U. H. F. : la fréquence U. H. F. étant fixée par l'accord de la cavité (9 200 MHz) on règle le champ H_0 pour se placer à l'endroit choisi du spectre de résonance électronique. Ce champ H_0 est repéré par un tracé préliminaire de la raie électronique et reste contrôlé par un petit gaussmètre à résonance magnétique placé dans une position excentrée de l'entrefer de l'aimant. Pendant l'irradiation U. H. F., l'émetteur du spectromètre à bobines croisées reste débranché pour réduire au minimum l'ébullition de l'hélium.

b) Mesure de la polarisation obtenue : cette mesure se fait à un champ fixe H'_0, toujours le même et qui est déterminé par la fréquence (2,8 MHz) du spectromètre à bobines croisées. Les champs H_0 et H'_0 sont distants d'environ 150 gauss et le passage de l'un à l'autre champ se fait en quelques secondes ce qui, par suite de la longueur des temps de relaxation nucléaire, ne provoque qu'une perte de polarisation négligeable. Les signaux obtenus sont mesurés avec une précision de 10 %.

3) Résultats expérimentaux. — Nous décrivons les résultats acquis avec l'échantillon de silicium dopé au phosphore dont les caractéristiques sont données ci-dessus (2e partie, fin du 2e paragraphe) et dont le spectre de résonance électronique à 4,2 °K est représenté (*fig.* 2). Nous appellerons signal naturel, un signal obtenu sans effet de polarisation dynamique, toute irradiation U. H. F. supprimée. Nous compterons négativement des signaux et des polarisations ayant même signe que ces signaux naturels (le moment magnétique du ^{29}Si est négatif et vaut — 0,55 magnéton nucléaire).

a) *Étude du temps de polarisation naturelle.* — A 77 °K les populations d'équilibre pour le ^{29}Si sont atteintes au bout de 20 minutes mais à 4,2 °K, la croissance du signal de résonance nucléaire en fonction du temps d'irradiation, est encore linéaire après 2 heures. Pour estimer la valeur de la polarisation d'équilibre S_0 à 4,2 °K, nous mesurons celle à 77 °K et la multiplions par 77/4,2. La valeur absolue S_0 de la polarisation ainsi obtenue nous sert de référence pour nos mesures ultérieures, nous lui donnons la valeur 100.

Ceci suppose que la sensibilité de la tête de mesure de la résonance nucléaire est la même à 4,2 °K et 77 °K.

En admettant l'existence d'un temps de polarisation unique T_1 à 4,2 °K, la pente de la droite traduisant la croissance du signal $S(t)$ du ^{29}Si en fonction du temps en heures, nous donne

$$S_0/T_1 = 4,4.$$

Si par ailleurs on étudie la décroissance naturelle d'un signal correspondant à une polarisation dynamique A, on constate qu'il décroit de 70 à 62 en 1 heure. Nous avons donc $(A + S_0)/T_1 = 8$.

On tire de ces deux résultats $T_1 \simeq 19$ heures, $S_0 \simeq 86$ ce qui est en bon accord — vu la précision des mesures — avec la valeur 100 ci-dessus et justifie l'hypothèse formulée d'un temps T_1 unique. Si, le ^{29}Si de l'échantillon étant polarisé, on sort ce dernier du champ de l'électro-aimant en le laissant à 4,2 °K, il apparaît un temps de dépolarisation bien plus court : 3 minutes. Il s'établit un équilibre de température entre les différents systèmes de spins de l'échantillon et le réseau. Il n'est pas exclu — *a priori* — d'envisager des expériences où les spins électroniques seraient « refroidis » par des spins nucléaires préalablement polarisés.

b) *Spectre de polarisation.* — Expérimentalement, il est plus facile de maintenir la fréquence d'irradiation U. H. F. fixe (vers 9 200 MHz) et de faire varier le champ H_0. L'étude de la polarisation dynamique en fonction de H_0 (spectre de polarisation) est faite en gardant constant le temps d'irradiation (5 minutes) et la puissance U. H. F.

dissipée dans la cavité (20 mW, ce qui correspond à 0,1 gauss environ). Les résultats sont représentés sur la figure 5 où chaque point expérimental est la

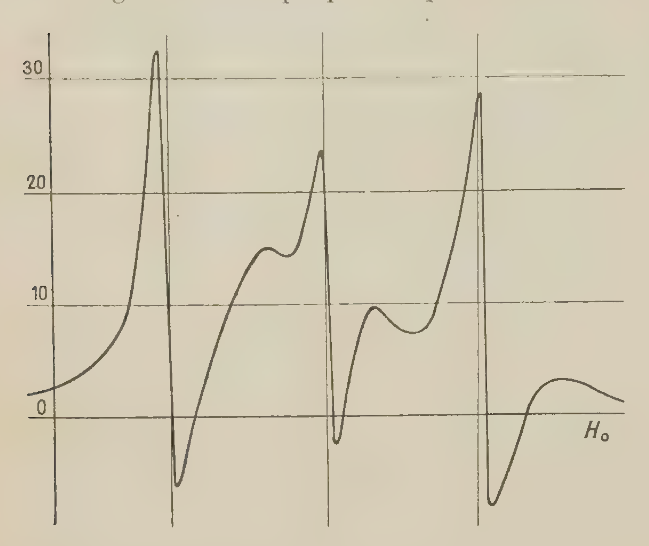


FIG. 5. — Spectre de polarisation. Le signal du silicium 29 est porté en ordonnées (en unités arbitraires).

moyenne de plusieurs mesures. On y distingue nettement le phénomène de polarisation par effet solide déjà décrit [21], [27], [28], cet effet a lieu lorsque la condition

$$h(\nu_e \mp \nu_N) = g\,\beta\,H_0$$

est satisfaite, ν_e et ν_N étant les fréquences de résonance électronique et nucléaire dans le champ H_0. Dans notre cas où la fréquence ν d'irradiation est fixe, la condition ci-dessus est satisfaite pour :

$$H_0 \mp \frac{h\,\nu_N}{g\,\beta} = \frac{h\,\nu}{g\,\beta} \quad \text{avec} \quad \frac{h\,\nu_N}{g\,\beta} \simeq 1 \text{ gauss.}$$

Cette valeur de 1 gauss étant inférieure à la demi-largeur de la raie électronique, l'on peut constater en se référant à la figure 6, que l'on

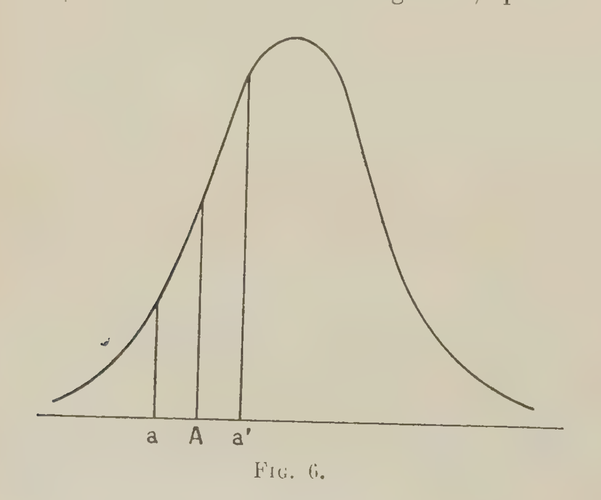


FIG. 6.

obtient l'effet solide pour des valeurs de ν et H_0 satisfaisant les conditions de résonance électronique. Correspondant à un point A de la raie électronique, existent deux ensembles de spins placés en a et a' à $\mp$ 1 gauss de A qui donneront des effets de signes contraires et d'amplitudes proportionnelles aux amplitudes de la raie électronique en a et a'. Quand les trois conditions : raie électronique de largeur inhomogène, temps de polarisation identique en tout point de cette raie, $h\nu_N/g\beta < 2{,}5$ gauss, sont remplies, on voit donc qu'un effet différentiel joue et qu'en traçant le spectre de l'effet solide, on obtient la dérivée de la raie d'absorption électronique. L'écart entre pics positifs et pics négatifs correspond d'ailleurs à 2,5 gauss.

Deux remarques peuvent être faites sur le spectre de la figure 5 :

Il existe un effet au centre de la structure, cet effet correspond à la petite raie centrale de la figure 2 ; il y a un effet de polarisation positive sur une largeur de 40 gauss environ, il est interprété par nous comme un effet Overhauser (couplage scalaire entre spins électroniques et nucléaires avec mouvement relatif) et il se superpose à l'effet solide.

c) *Temps de polarisation dynamique.* — Pour tracer avec plus de précision la croissance du signal en fonction de la durée de l'irradiation, nous avons choisi de nous placer entre deux pics. La puissance dissipée dans la cavité étant 20 mW, nous avons obtenu la courbe de la figure 7. Si on l'assi-

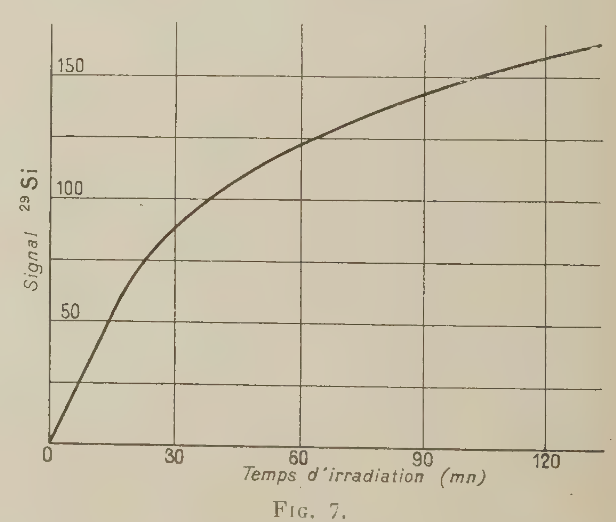


FIG. 7.

mile à une exponentielle $S = S'_0\,(1 - e^{-t/T'_1})$, on obtient $S'_0 = 200$ et $T'_1 = 55$ minutes. Ce temps T'_1 est bien inférieur au temps T_1 de 19 heures indiqué ci-dessus, ce qui est en accord avec les prévisions théoriques et les résultats expérimentaux antérieurs concernant la polarisation par effet solide [21].

Nous avons vérifié par la suite que le temps de polarisation obtenu en se plaçant sur un pic de la courbe est bien du même ordre que T'_1 et donc que ce temps est caractéristique pour tout le spectre de polarisation.

d) *Influence de la puissance U. H. F d'irradiation.* — Il y a croissance du signal quand on augmente la puissance W dissipée dans la cavité. Cette croissance est représentée sur la figure 8 pour

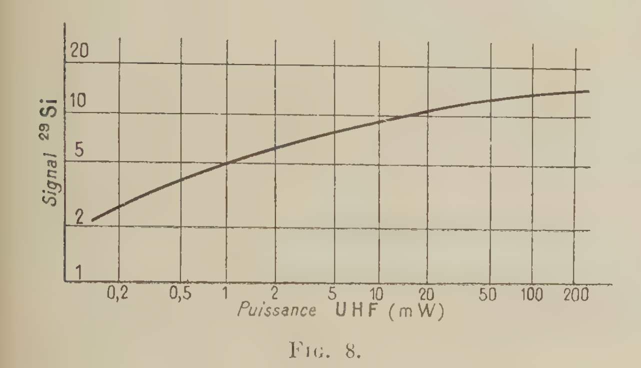


FIG. 8.

un temps de polarisation de 3 minutes, elle ne semble pas devoir correspondre à une loi de variation simple et il y a probablement mélange de plusieurs phénomènes : raccourcissement du temps de polarisation T'_1 quand W augmente, variation de la valeur S'_0, polarisation dynamique d'équilibre.

e) Nous avons essayé d'obtenir pour cet échantillon le maximum de polarisation possible avec notre dispositif expérimental : en nous plaçant pendant deux heures en un point où l'effet est maximum et en envoyant dans la cavité une puissance U. H. F. de 200 mW ($H_1 \simeq 0{,}4$ gauss), nous avons obtenu un signal de 2 000 ce qui représente un facteur d'accroissement de 230 par rapport au signal naturel au bout de deux heures de polarisation et de 20 par rapport au signal naturel d'équilibre S_0 tel que nous l'avons estimé ci-dessus.

La température des spins nucléaires quand l'échantillon est ainsi polarisé puis placé dans le champ du laboratoire (0,5 gauss) est — 30.10^{-6} °K.

4) CONCLUSION. — L'existence de cet effet solide aux températures de l'hélium liquide, nous semble être un phénomène intéressant à signaler car il permet une polarisation dynamique des noyaux dans les solides aux très basses températures et ceci en un temps notablement plus court que le temps de polarisation naturel de ces mêmes noyaux. L'expérience montre et un calcul préliminaire permet de prévoir que le degré de polarisation atteint dépend peu de la puissance U. H. F. d'irradiation donc qu'il n'est pas nécessaire d'utiliser une source fournissant plusieurs watts, ce qui serait peu compatible avec la conservation de l'hélium liquide entourant l'échantillon.

Par ailleurs, ces expériences donnent des renseignements complémentaires de ceux fournis par la technique de double résonance de Feher (technique E. N. D. O. R.). Ce dernier peut mesurer l'amplitude de l'interaction de contact aux différents sites cristallins occupés par les noyaux de silicium voisins des impuretés paramagnétiques. Il est probable que ces mêmes noyaux de silicium se trouvent dans des champs locaux différents et que leur résonance n'est pas observable car ils fournissent une raie trop large.

Nous mesurons le signal de résonance nucléaire de noyaux de silicium, soumis au seul champ H_0 donc placés loin des impuretés, l'effet solide a lieu grâce à l'existence du couplage dipôle-dipôle entre ces noyaux et les spins électroniques, et il semble qu'il faille faire intervenir un processus de diffusion de spin entre les noyaux de silicium pour expliquer quantitativement nos résultats. Cette explication est de toute façon compliquée dans l'état actuel de nos conditions expérimentales par le fait que nous saturons la résonance électronique en même temps que nous irradions dans des conditions favorables pour obtenir l'effet solide, mélangeant ainsi deux effets qui sont antagonistes.

Par ailleurs il est connu que les processus de relaxation électronique sont complexes et qu'en saturant une fraction de la raie de résonance électronique, on affecte tout le reste du spectre en mettant en œuvre au moins cinq processus de relaxation différents [12] (pour un silicium dopé au phosphore).

D'autres expériences sont prévues dans notre laboratoire dans lesquelles le rapport $\Delta\nu_e$ (largeur de la raie électronique) sur ν_N (fréquence de résonance du ^{29}Si) sera plus faible. Ceci peut s'obtenir de plusieurs façons :

a) En augmentant ν_N, c'est-à-dire en utilisant un champ H_0 de 12 500 gauss, donc une fréquence ν_e de 32 000 MHz et une fréquence ν_N de 10,5 MHz. $\Delta\nu_e/2$ aura toujours la même valeur, mais $h\nu_N/g\beta$ sera 3,8 gauss.

b) En diminuant $\Delta\nu_e$ ce qui peut être recherché dans des échantillons contenant un certain taux optimum d'impuretés (pour 3.10^{18} P/cm³ $\Delta\nu_e = 0{,}25$ gauss).

Signalons pour terminer que l'on peut envisager d'utiliser cette technique de polarisation dynamique suivie d'observation de la résonance nucléaire soit pour enregistrer des signaux de résonance nucléaire trop faibles pour être observés naturellement ou n'atteignant une valeur notable à basse température qu'après un temps de polarisation trop long, soit pour détecter l'existence d'une résonance non décelable avec un spectrographe à

résonance électronique. Dans ce dernier cas, une image de la structure hyperfine éventuelle serait même fournie.

Nous sommes heureux de remercier M. A. Abragam, Chef du Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique au C. E. N. de Saclay, qui nous a suggéré ce travail et qui nous a constamment suivi et aidé de ses conseils, pendant son développement.

Manuscrit reçu le 10 mars 1959.

Note ajoutée à la correction : L'expérience b) proposée ci-dessus a été faite, elle donne lieu à un effet Overhauser. Nous avons obtenu un facteur d'accroissement de 200 pour le ^{29}Si à 4,2 °K.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Kohn (W.) et Luttinger (J. M.), *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1721.
[2] Abragam (A.) et Combrisson (J.), *Nuovo Cimento*, 1957, **6**, 1197.
[3] Portis (A. M.), Kip (A. F.), Kittel (C.) et Brattain (W. H.), *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 988.
[4] Fletcher (R. C.), Yager (W. A.), Pearson (G. L.) et Meritt (F. R.), *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 1392.
[5] Fletcher (R. C.), Yager (W. A.), Pearson (G. L.) et Meritt (F. T.), *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 844.
[6] Feher (G.), Gordon (J. P.), Gere (E. A.) et Thurmond (C. D.), *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 221.
[7] Gordon (J. P.) et Bowers (K. D.), *Phys. Rev.*, Letters **1**, 1958, 368.
[8] Feher (G.), Fletcher (R. C.) et Gere (E. A.), *Phys. Rev.*, 1956, **100**, 917.
[9] Slichter (C.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 479.
[10] Feher (G.), *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 834.
[11] Feher (G.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 830.
[12] Feher (G.), *Phys. Rev*, (à paraître).
[13] Combrisson (J.), Honig (A.) et Townes (C. H.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 2451.
[14] Abragam (A.) et Combrisson (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 276.
[15] Abragam (A.) et Combrisson (J.), *C. R. Acad. Sc.* 1956, **243**, 650.
[16] Pipkin (F. M.) et Culvahouse (J. W.), *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 1423.
[17] Portis (A. M.), *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 1071.
[18] Olzman (H.), Anderson et Koth, *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 542.
[19] Shulman (R. G.) et Wyluda (B. J.), *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 1127.
[20] Overhauser (A.), *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 411.
[21] Abragam (A.) et Proctor (W.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2253.
[22] Abragam (A.), Combrisson (J.) et Solomon (I.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 1035.
[23] Combrisson (J.) et Solomon (I.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 837 et 840.
[24] Carver (T. R.) et Slichter (C. P.), *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 212.
[25] Abragam (A.), *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1729.
[26] Solomon (I.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 559.
[27] Erb (E.), Motchane (J. L.) et Uebersfeld, *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 3050.
[28] Abragam (A.), Combrisson (J.) et Solomon (I.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **247**, 2337.

INFLUENCE DES DISLOCATIONS SUR LES INTENSITÉS INTÉGRÉES DES RÉFLEXIONS DES RAYONS X PAR DES CRISTAUX DE GERMANIUM

Par Mlle F. LEFÈVRE (*) et A. AUTHIER,

Laboratoire de Minéralogie et Cristallographie, Faculté des Sciences, Paris.

Résumé. — On a introduit des dislocations dans un monocristal de germanium par des compressions successives et comparé les intensités intégrées absolues des réflexions des rayons X par ce monocristal pour différentes densités de dislocations.

Abstract. — Dislocations have been introduced in a monocrystal of germanium by successive compressions and the absolute integrated intensities of the Bragg reflections of X-rays on this crystal have been compared for different densities of dislocations.

Introduction. — Il est bien connu que l'intensité intégrée $E\omega/I$ d'une réflexion hkl d'un monocristal réel est en général différente des intensités théoriques calculées dans les hypothèses du cristal parfait et du cristal idéalement imparfait. La théorie de l'extinction permet de décrire de façon approximative un cristal voisin de l'état idéalement imparfait et d'interpréter les intensités mesurées. Elle est cependant assez artificielle et les résultats obtenus sont peu concluants. Ceci est lié au fait que l'état idéalement imparfait est en réalité très compliqué du point de vue structural. Il semble donc qu'il serait plus simple de partir du cristal parfait, d'introduire des imperfections et d'observer la variation de l'intensité intégrée en fonction du degré d'imperfection. Si le type d'imperfection prédominant est la dislocation, le degré d'imperfection sera caractérisé par la densité de dislocations.

C'est dans cet esprit que nous avons commencé une étude du germanium. Nous avons choisi ce corps parce qu'il est possible d'en obtenir de beaux monocristaux artificiels, contenant peu de dislocations. D'autre part on peut créer des dislocations par déformation plastique à haute température [1]. Battermann [2] a fait une étude de monocristaux non déformés de germanium et, pour la radiation du cuivre, il n'a pas observé de variation d'intensité pour des densités de dislocations allant de 10^3 à 10^5 par cm^2. Par contre il a observé l'influence de défauts ponctuels (atomes d'impuretés interstitiels) sur l'intensité intégrée. De nombreux auteurs [3], [4], [5], [6] ont étudié expérimentalement la correspondance entre la largeur de raie des réflexions sélectives et la densité de dislocations, et ils l'ont comparée à la relation théorique établie par Gay, Hirsch et Kelly [7].

Étude expérimentale. — 1) Mesure de l'intensité intégrée. — Les mesures ont été faites sur un double spectromètre à axe horizontal. Les faisceaux incidents et réfléchis sont reçus dans une chambre d'ionisation. Le courant produit est amplifié à l'aide d'un dispositif à lampes électromètres et mesuré par le déplacement du spot d'un galvanomètre sur un papier photographique. Le cristal et la chambre sont animés d'un mouvement de rotation très lent (13″/mn pour le cristal). Pour chaque réflexion, on a pris la moyenne des mesures effectuées avec les montages parallèle et antiparallèle afin d'éliminer l'influence de légères désorientations de la face de l'échantillon par rapport au plan réticulaire hkl. La longueur d'onde utilisée est celle du molybdène et le monochromateur est constitué par un échantillon de calcite clivée.

La précision sur les mesures d'intensités intégrées absolues est de 8 % environ.

Les échantillons utilisés se présentent sous la forme de plaquettes parallèles à (111) ou (110) et de cubes de 1 cm de côté dont les faces sont taillées parallèlement à (111), $(0\bar{1}1)$ et $(\bar{2}11)$. Les faces sont polies soigneusement à l'aide d'alumine et d'eau sur du feutre.

2) Mise en évidence des dislocations par attaque chimique. — L'attaquant utilisé est le CP4 qui est un mélange de 25 cm^3 NO_3H (40 °Bé), 15 cm^3 HF (40 %), 15 cm^3 CH_3CO_2H glacial et de quelques gouttes de brome [3]. Ce mélange doit être préparé plusieurs heures à l'avance. La durée de l'attaque est comprise entre 2 et 5 minutes et il est nécessaire que les faces soient polies et très propres. L'apparition de cônes d'attaque aux points d'aboutissement des dislocations sur la face n'a lieu que sur un plan (111), la vitesse d'attaque est en effet trop grande sur les autres plans. Les dislocations ne donnent lieu à des cônes d'attaque que si l'angle de la ligne de dislocation avec la normale à la face est inférieur à 30°. Les échantillons utilisés possédaient avant déformation une densité de dislocations de 10^3 par cm^2 environ (*fig.* 1).

3) Déformation plastique. — La déformation plastique a été réalisée par compression à une température élevée, supérieure à la température de

(*) Adresse actuelle : Centre de Recherches Métallurgiques, École des Mines, Paris.

375 °C à partir de laquelle le germanium devient plastique. On a effectué deux déformations successives sur le même échantillon, l'une à 550 °C et sous une pression de 50 kg/cm², et l'autre à 600 °C et sous une pression de 60 kg/cm². Dans le premier



Fig. 1. — Cônes d'attaque sur la face (111) d'un cristal de germanium (cristal non déformé). Densité de dislocations : 6×10^3 par cm² ($\times$ 215).

cas nous avons obtenu une déformation de 2 °/₀₀ au bout d'une heure et dans le deuxième cas une déformation de 3 °/₀₀. La durée du refroidissement

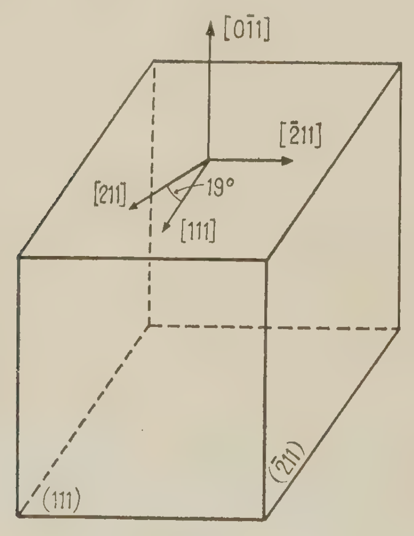


Fig. 2.

depuis 550 °C jusqu'à 375 °C est de une demi-heure environ. La compression se fait suivant la direction [011̄] et les lignes de dislocations formées sont dans le plan (01̄1). Plusieurs systèmes de glissement sont possibles, mais il est vraisemblable que les dislocations formées sont suivant les directions [2̄11] et [211] (*fig.* 2). Les dislocations [2̄11] sont parallèles à la face (111) et ne sont pas révélées par l'attaque chimique ; par contre les dislocations [211] font un angle de 19° avec [111] et sont révélées. La densité de cônes d'attaque après la première déformation est de 5×10^5 par cm² environ (*fig.* 3) et de 2×10^6 par cm² après la deuxième.

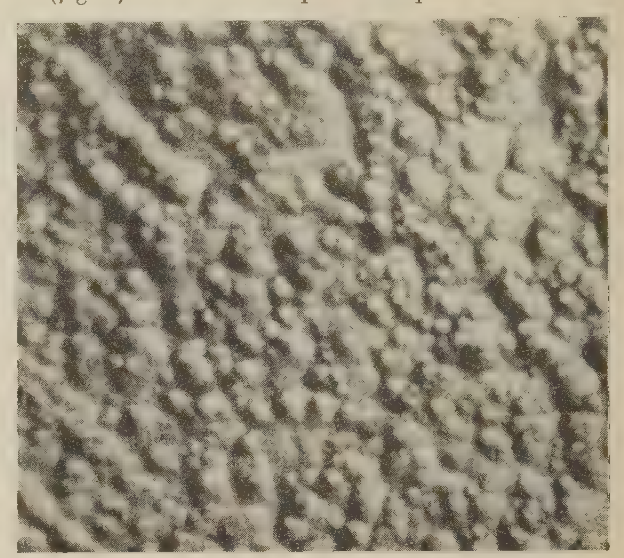


Fig. 3. — Cônes d'attaque sur la face (111) d'un cristal de germanium après une déformation de 2 °/₀₀. Densité de dislocations : 5×10^5 par cm² ($\times$ 215).

Si, comme il est probable, nous avons créé le même nombre de dislocations [211] et [2̄11], nous avons ainsi fait apparaître 10^6 dislocations par cm² dans le cristal après la première déformation, et 4×10^6 par cm² après la deuxième.

Résultats. — Nous avons comparé sur le tableau I les intensités intégrées théoriques et expérimentales. Les intensités théoriques ont été calculées dans les trois hypothèses suivantes : cristal idéalement imparfait, cristal parfait sans tenir compte de l'absorption et cristal parfait en tenant compte de l'absorption (James [8], p. 323). Le calcul de l'intensité dans le dernier cas a été effectué à l'aide d'une machine Bull au Laboratoire de Calcul Numérique de la Faculté des Sciences.

Nous avons pris pour la température de Debye la valeur de 370° (Collins et Fan [9]). Les facteurs de structure sont ceux calculés par Freeman [10]. La correction due à la polarisation du faisceau par le monochromateur est négligeable.

On voit que les intensités mesurées pour des densités de dislocations de 8×10^2 par cm², 10^6 par cm² et 4×10^6 par cm² sont comprises entre les valeurs calculées pour le cristal parfait avec absorption et le cristal idéalement imparfait, et que l'intensité intégrée augmente avec la densité de dislocations.

TABLEAU I

	Intensités théoriques			Intensités mesurées		
	Parfait avec absorption	Parfait sans absorption	Idéalement imparfait	Densité de dislocations		
(h, k, l)				8×10^2 par cm²	10^6 par cm²	4×10^6 par cm²
(1, 1, 1)	$30{,}5 \times 10^{-6}$	$46{,}0 \times 10^{-6}$	125×10^{-6}	49×10^{-6}	75×10^{-6}	80×10^{-6}
(3, 3, 3)	6,65	9,17	14,2	7,9	9,7	13
(4, 4, 4)	4,81	6,70	10,1	5,3	6,4	7,7
(4, 2, 2)	10,6	14,5	33,9	13	18	20
(2, 2, 0)	24,7	35,1	118	56	67	—
(4, 4, 0)	7,29	10,9	21,8	10	19	—

La figure 4 montre que la largeur de raie augmente avec la densité de dislocations, comme on pouvait le prévoir. Les dislocations qui contribuent le plus à l'élargissement de la raie sont celles qui sont parallèles à la trace du faisceau de rayons X. Les dislocations formées sont parallèles à [211] et [$\bar{2}$11]. Si la trace du faisceau est parallèle à l'une de ces deux directions, on aura un élargissement notable, et beaucoup plus important que si la trace est parallèle à [0$\bar{1}$1]. C'est bien ce que nous avons observé sur les enregistrements et nous l'avons d'autre part vérifié avec des diagrammes utilisant un faisceau monochromatique focalisé sur la surface du cristal (*fig.* 5).

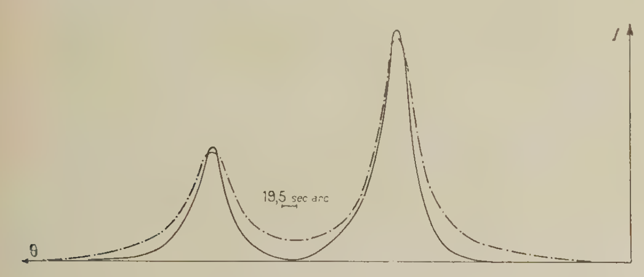


Fig. 4. — Comparaison des courbes de réflexion avant et après déformation (réflexion (333), position parallèle).
— Courbe en trait plein : avant déformation.
— Courbe en trait pointillé : après la première déformation.

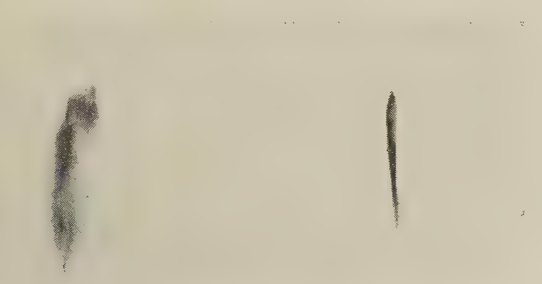


Fig. 5. — Diagrammes de Barraud-Lambot.
a) Trace du faisceau parallèle à [0$\bar{1}$1].
b) Trace du faisceau parallèle à [$\bar{2}$11].

Discussion des résultats. — Les deux principales difficultés expérimentales que nous ayons rencontrées dans ce travail sont l'influence de l'état de surface et l'imprécision de la détermination des dislocations.

Le polissage mécanique laisse toujours à la surface une couche perturbée. L'existence de cette couche conduit à un renforcement apparent de l'intensité intégrée du cristal non perturbé. Nous l'avons mis en évidence en comparant les intensités intégrées pour deux états de surface différents d'un même cristal.

La méthode de révélation des dislocations par attaque chimique est imprécise et le dénombrement est d'autant plus délicat que la densité de dislocations est plus grande. De plus, seules sont révélées les dislocations faisant un angle inférieur à 30° avec la normale à une face (111).

Il est néanmoins certain que l'on observe dans le germanium une augmentation sensible de l'intensité intégrée et de la largeur de raie des réflexions sélectives des rayons X avec la densité de dislocations. La longueur d'onde utilisée était celle du molybdène.

Nous remercions MM. Franke, Bernard et Burgeat, du C. N. E. T. et M. Garreta, de la C. S. F., qui nous ont aimablement fourni les cristaux de germanium.

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Minéralogie et Cristallographie de la Faculté des Sciences de Paris sous la direction de M. H. Curien.

Manuscrit reçu le 8 avril 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Greiner, Breidt, Hobstetter et Ellis, *J. Metals*, 1957, July, 813.
[2] Battermann, *J. Appl. Phys.*, U. S. A., 1958. **30**, 4 ; 508.
[3] Vogel, Pfann, Corey et Thomas, *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 489.
[4] Vogel, *Acta Met.*, 1955, **3**, 245.
[5] Kurtz, Kulin et Averbach, *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1285.
[6] Burgeat, Communications au Congrès de Physique du Solide à l'Exposition de Bruxelles, juin 1958.
[7] Gay, Hirsch et Kelly, *Acta Met.*, 1953, **1**, 315.
[8] James, The Optical principles of the diffraction of X-Rays, G. Bell and Sons Ltd, 1954.
[9] Collins et Fan, *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 674.
[10] Freeman, à paraître dans *Physical Review*.

SUR LA FILIATION $^{78}Ge \xrightarrow{\beta^-} {}^{78}As$

Par C. YTHIER (*) et A. H. W. ATEN, Jr
Instituut von Kernphysisch Onderzoek, Amsterdam.

Résumé. — ^{78}Ge, formé par réaction ^{82}Se(n, αn) avec des neutrons de 30 MeV a été isolé chimiquement. Sa période, déterminée par des séparations successives As/Ge réalisées selon plusieurs méthodes, est trouvée égale à 2,1 ± 0,1 h, en désaccord avec un résultat antérieur de Sugarman [1].

Abstract. — ^{78}Ge produced by the reaction ^{82}Se(n, αn) ^{78}Ge with 30 MeV neutrons has been isolated by chemical means. Its half-life was determined by successive milkings using different chemical procedures and was found to be 2.1 ± 0.1 hours, in disagreement with an early result of Sugarman [1].

Dans le but de mettre au point un ensemble de méthodes qui permettent l'étude d'isotopes lourds du germanium et de leurs produits de filiation, nous avons étudié la chaîne 78.

Le germanium était formé par irradiation de sélénium, sous forme de dioxyde solide (∼ 1 g), par les neutrons de la réaction Be (26 MeV d, n).

1. **Isolement du germanium.** — Procédé. — Après irradiation, le dioxyde de sélénium est dissous à froid dans l'eau distillée en présence d'entraîneurs (2 mg Ge, 2 mg As), le germanium est extrait par le tétrachlorure de carbone d'une solution 9 M HCl en présence de chlore, et après plusieurs lavages de la couche organique par HCl 9 M, le germanium est réextrait par une solution 4 M HCl.

Dans les expériences dont le but est la mesure de l'activité de la fraction germanium, le germanium est précipité par 1 ml d'une solution concentrée

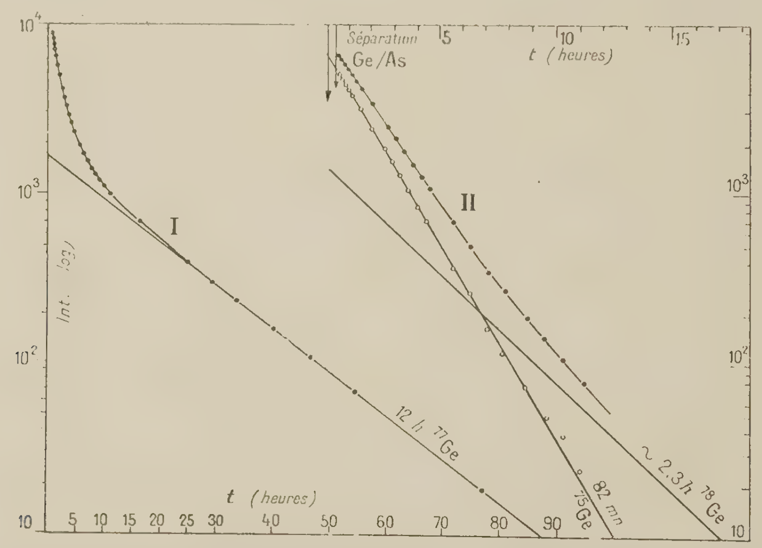


Fig. 1. — Analyse de la décroissance de l'activité du germanium formé par les réactions Se(n, α) et Se(n, αn) dans une irradiation de 30 minutes. Le rayonnement a été mesuré à travers des filtres absorbants d'aluminium (150 mg/cm²). I : Décroissance de l'activité totale. II : Résultat de la soustraction de l'activité due au ^{77}Ge (12 h) ; une composante de ∼ 2,3 h est nettement présente, et l'activité due au ^{75}Ge s'obtient par soustraction de cette composante.

de Na_2S en milieu HCl 6 M ; le précipité est filtré sur un filtre quantitatif, lavé par un mélange alcool-HCl saturé de H_2S, puis rincé par l'alcool et séché.

Ce procédé est décrit ailleurs [2] avec des variantes permettant la séparation en moins de deux minutes. L'extraction du germanium par CCl_4 a été étudiée par Fischer et Harre [3].

(*) Maintenant au Laboratoire de Physique des Rayons X de l'École Pratique des Hautes Études, Sorbonne, 12, rue Lord Byron, Paris.

Résultats. — La figure 1 montre l'analyse de la décroissance de l'activité du germanium mesurée au compteur bêta à fenêtre mince (3 mg/cm²) avec un absorbant d'aluminium de 143 mg/cm² de manière à absorber presque complètement le rayonnement bêta de ^{77}As (39 h) produit de filiation

de ^{77}Ge (12 h). Après soustraction de l'activité due au 12 h, il est possible d'observer la présence d'une période légèrement supérieure à 2 heures, et l'intensité relative de cette composante augmente si l'on mesure avec des absorbants plus épais.

Une détermination exacte de sa période est difficile, car son observation est gênée par la présence du 82 min ^{77}Ge.

Une activité du germanium de période $2,1 \pm 0,1$ h a été trouvée dans la fission de l'uranium par Steinberg et Engelkemeir [4], qui ont étudié son rayonnement bêta ($E \sim 0,9$ MeV) et signalé la présence de rayonnement gamma. Ces auteurs ont montré que ce germanium de période 2,1 h donne par filiation un arsenic de période 90 min et ils ont suggéré d'attribuer à cette chaîne le nombre de masse 78 en se basant sur son rendement dans la fission.

Une étude de la filiation $^{78}Ge \xrightarrow{\beta^-} {}^{78}As$ a été faite récemment par Sugarman [1]. Alors que Steinberg et Engelkemeir s'étaient bornés à constater la présence des bêtas du 90 min As dans le rayonnement du 2,1 h Ge, ainsi que la présence d'un maximum dans sa décroissance, Sugarman a eu recours à des séparations successives. Ces séparations étaient effectuées par la méthode de distillation [5] avec le germanium isolé des produits de fission de l'uranium. Pour la période du ^{78}Ge, il trouve 86 ± 1 min [1], [6], et cette valeur est de plus de 30 % inférieure à celle trouvée par Steinberg et Engelkemeir.

En raison de ce désaccord, il nous a paru utile d'étudier de plus près cette période de 2,1 h formée dans nos expériences et de vérifier s'il s'agit de la substance-mère de ^{78}As en ayant recours à des séparations successives par des méthodes nouvelles. La formation de ^{78}Ge par une réaction :

$$^{(82)}Se(n, \alpha n)^{78}Ge$$

est en effet possible avec les neutrons de la réaction Be (26 MeV d, n) [7].

2. Séparations successives As/Ge et détermination de la période du ^{78}Ge. — La solution du germanium obtenue par la méthode d'extraction ci-dessus, agitée avec quelques gouttes d'hydroxylamine pour réduire le chlore, peut être utilisée à des séparations successives selon deux méthodes dont voici le principe :

A) Séparation As^0/Ge^{II}. — L'acide hypophosphoreux réduit Ge^{IV} en Ge^{II} [8] :

$$GeCl_4 + H_2O + H_3PO_2 = GeCl_2 + H_3PO_3 + 2HCl$$

et réduit en milieu HCl concentré à chaud As^{III} à l'état d'arsenic colloïdal.

Procédé. — Verser la solution de germanium dans un ballon contenant 10 ml d'une solution fortement chlorhydrique d'hypophosphite de sodium, ajouter 30 ml d'HCl 6 N et 1 mg d'As^{+3}. Couvrir le ballon d'un réfrigérant, porter à l'ébullition et prolonger l'ébullition une minute. Séparer le ballon du réfrigérant, et filtrer d'un trait sur un filtre membrane n° 5. A intervalles de temps régulier, ajouter 1 mg d'As^{3+} à la solution de germanium, maintenir à l'ébullition une minute, puis filtrer sur filtre membrane.

Chaque séparation dure 1,5 minutes, aussi la méthode peut-elle servir à l'isolement de produits de filiation de courte période du germanium.

B) Séparation As^{III}/Ge^{IV}. — Prestwood [9] a proposé pour la séparation As/Ge l'extraction de AsI_3 d'une solution chlorhydrique par le chloroforme, l'arsenic étant seul extrait pour une certaine concentration en acide iodhydrique. Nous avons étudié [2] le rôle de la concentration en HCl et HI dans cette extraction. La figure 2 montre la variation du taux d'extraction de l'arsenic de 15 ml d'une solution HCl 3 N (courbe I) ou 4 N (courbe II) par 20 ml de $CHCl_3$, équilibré au préalable, en fonction du nombre de ml de HI (45 %) ajoutés.

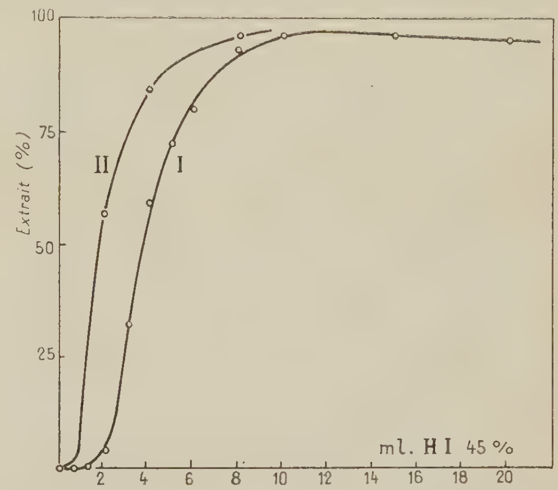


Fig. 2. — Extraction de AsI_3 d'une solution chlorhydrique par le chloroforme en présence d'acide iodhydrique. (Commentaires, cf. paragr. 2 B.)

Procédé. — Verser dans un entonnoir à décanter la solution de germanium préparée par la méthode décrite au paragraphe 1. Ajouter 20 ml de $CHCl_3$ (équilibré au préalable par HCl 4 N), 6 ml d'acide iodhydrique pA à 47 %, et 1 ml d'une solution d'entraîneurs contenant 0,5 mg d'As^{3+} et 0,5 mg d'As^{5+}. Agiter. Recueillir le chloroforme dans un second entonnoir à décanter contenant 10 ml de H_2SO_4 1 M.

Ajouter à la solution iodhydrique du premier entonnoir à décanter une nouvelle portion de 10 ml de $CHCl_3$ (équilibré au préalable par HCl 4 N). Agiter. Recueillir comme ci-dessus la phase organique.

Agiter le chloroforme dans le second entonnoir à décanter avec la solution H_2SO_4 1 M. Recueillir le chloroforme dans un becher. Verser la phase aqueuse dans un becher contenant 30 ml

d'HCl 6 M et 10 ml d'une solution fortement chlorhydrique d'hypophosphite de sodium. Après une minute au moins d'ébullition filtrer d'un trait sur un filtre membrane et laver avec de l'eau bouillante.

On obtient dans ces conditions une couche très mince d'arsenic métallique dont la répartition est très uniforme.

C) Résultats. — Les deux méthodes A et B décrites ont permis d'étudier la filiation :

$$^{77}\text{Ge (12 h)} \xrightarrow{\beta^-} {}^{77}\text{As (39,5 h)}.$$

Le ^{77}Ge était produit par la réaction Se(n, α)Ge et isolé par la méthode du paragraphe I quelques minutes après la fin de l'irradiation. Il a ainsi été possible de vérifier que ces méthodes permettent une détermination correcte de la période de la substance-mère.

Si l'on effectue les séparations successives toutes les heures, on observe dans les premières fractions non seulement la présence du 39,5 h ^{77}As mais encore celle d'une activité de 91 minutes. La figure 3 montre la décroissance, mesurée sans absorbant au compteur bêta, de l'activité de la première fraction, séparée du germanium après un temps de croissance de 1 heure. L'étude du rayonnement ainsi que la période montrent que le corps de 91 min est bien l'arsenic 78.

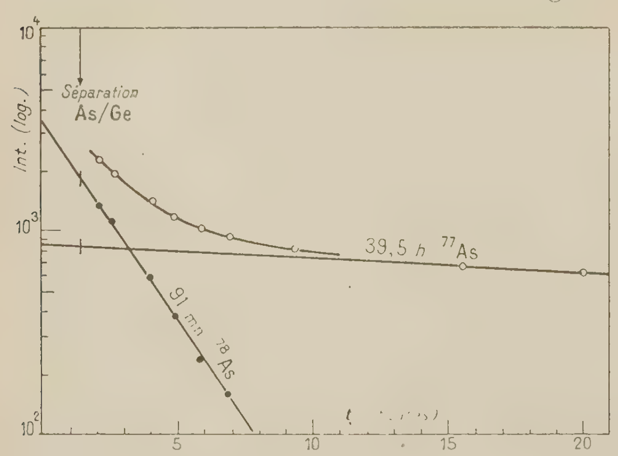


Fig. 3. — Décroissance de l'activité de l'arsenic, résultant de la filiation Ge $\xrightarrow{\beta^-}$ As du germanium produit dans l'irradiation du sélénium par les neutrons de 30 MeV. (Cette fraction arsenic a été séparée du germanium 1 h 25 min après la fin de l'irradiation, prise comme origine de l'échelle de temps. Une séparation de purification a été effectuée 25 min après la fin de l'irradiation. Durée de l'irradiation : 30 minutes.)

La présence du 91 min ^{78}As dans cette fraction arsenic prouve que sa substance-mère ^{78}Ge a bien été formée par une réaction :

$$^{82}\text{Se(n, } \alpha\text{n)}^{78}\text{Ge}.$$

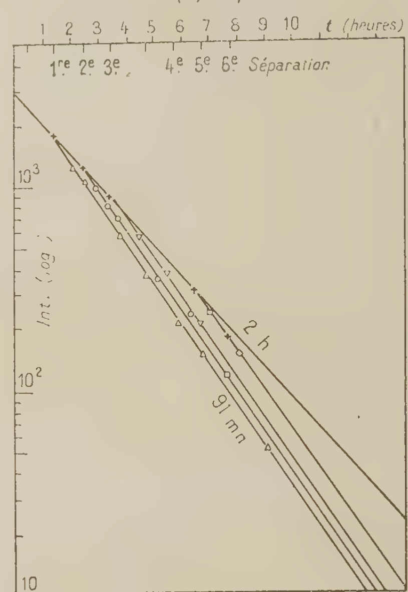


Fig. 4. — Séparations successives As/Ge par extraction du tri-iodure d'arsenic par $CHCl_3$.

(Le temps de croissance du 91 min à partir de sa substance-mère est de 1 heure pour toutes les séparations. Son intensité dans chaque fraction arsenic au moment de la séparation est représentée par une croix.)

La mesure de l'intensité du 91 min dans les fractions arsenic, séparées successivement toutes les heures de la solution de germanium, permet, comme le montre la figure 4, de déterminer la période de sa substance-mère :

$$T(^{78}\text{Ge}) = 2{,}1 \pm 0{,}1 \text{ h}$$

en bon accord avec les résultats de la mesure de la fraction germanium.

Manuscrit reçu le 20 avril 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Sugarman (N.), *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 570.
[2] Ythier (C.), *Thèse*, 1959.
[3] Vanossi (R.), *Ann. Quim. Argentina*, 1944, **32**, 164. Fischer (W.) et Harre (W.), *Z. Angewandte Chemie*, 1954, **66**, 165.
[4] Steinberg (E. P.) et Engelkemeir (D. W.), in " Radiochemical Studies, The fission products ", C. D. Coryell et N. Sugarman, éd. MacGraw-Hill, N. Y., 1950, papier n° 54.
[5] Cf. Winsberg (L.), in " Radiochemical Studies, The fission products ", MacGraw-Hill, 1950, papier n° 228.
[6] Way (K.), King (R. W.), McGinnis (C. L.) et Van Lieshout (R.), " Nuclear Level Schemes, A = 40-A = 92 ", USAEC-TID 5300, National Research Council, Washington D. C., 1955.
[7] Le seuil de la réaction, calculé à l'aide des « Tables numériques « de Martin (C. N.) (Gauthier-Villars, Paris, 1954), est de l'ordre de 7,0 MeV, et la barrière coulombienne de l'ordre de 10,7 MeV.
[8] Cf. Charlot (G.), « Théorie et méthode nouvelle d'analyse qualitative », p. 225, Masson, Paris, 1949 ; et Brauer (G.) (éd.) « Handbuch der präparativen Chemie », Enke, Stuttgart, 1951-1952.
[9] Prestwood (J.), in " Collected Radiochemical Procedures " (J. Kleinberg, ed.) USAEC document LA-1721, 1954 (unclassified), p. 80 sq.

MESURE DES MOBILITÉS D'IONS GAZEUX PAR L'ANALYSEUR PAUL LANGEVIN

Par Mme E. MONTEL,
École Supérieure de Physique et de Chimie de la Ville de Paris, Laboratoire du Directeur.

Résumé. — Après avoir apporté à l'appareil quelques modifications d'ordre mécanique, on a précisé dans le détail les conditions de mesures les plus favorables en étudiant, sur l'air assez sec, la variation du courant d'ionisation des deux signes, en fonction de l'azimut de l'électrode collectrice. On a tracé les courbes de variation du courant, d'une part à différence de potentiel constante U entre les cylindres fixes, pour diverses valeurs de la vitesse de rotation du tambour médian, d'autre part, à vitesse constante pour diverses valeurs de U.

Ces courbes présentent un maximum d'autant plus aigu que la vitesse de rotation est plus faible. L'abscisse de ce maximum correspond d'après la théorie de l'appareil, à une valeur de la mobilité dont on a essayé d'interpréter la signification au point de vue, encore controversé, de l'unicité des formes stables d'ions présents dans le gaz.

Abstract. — After a few improvements had been made on the mechanical parts of the apparatus, the best conditions for measurement have been determined, in rather dry air. For that purpose, the variations of the ionization current of both signs, with the azimuth of the collecting electrode, have been determined.

The curves of variation of current have been drawn, first when the potential U between the fixed cylinders is constant, while the rotational speed of the middle one is varying; then when the speed is constant and U varying. The slower the rotation speed, the sharper are the peaks of the curves. According to the theory of the apparatus, the abscissa of the maximum is related to a value of the mobility, the meaning of which is debatable, on the account of the fact that only one of several stable kinds of ions are present in the gas.

Dans l'étude des ions gazeux par l'Analyseur Paul Langevin, la mobilité k d'une espèce déterminée d'ions est donnée par la formule

$$\theta = \frac{2\omega}{kU} b^2 (\text{Log } \alpha)^2 \qquad (1)$$

où θ est l'angle de l'azimut de l'électrode collectrice E avec celui de la fente-source F ;

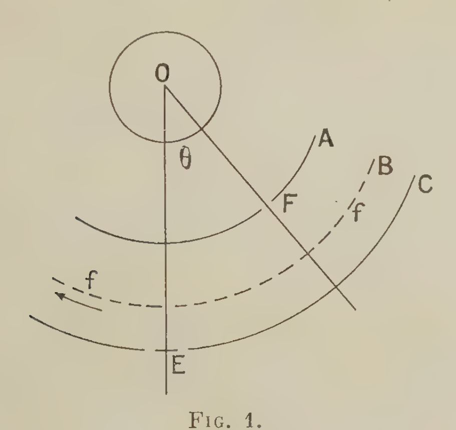


Fig. 1.

ω la vitesse angulaire du tambour tournant B percé de séries parallèles de fentes horizontales ;

U la différence de potentiel totale entre les cylindres fixes A et C ;

b et α des caractéristiques géométriques de l'appareil.

Des essais sommaires [2] effectués dans l'air ambiant avaient montré qu'on obtenait bien pour les ions des deux signes, des maxima de courant nettement séparés, en faisant varier l'angle θ à vitesse et différence de potentiel constantes.

Ces expériences ont été reprises de manière systématique après avoir apporté à l'appareil un certain nombre de modifications destinées, notamment, à assurer par des manœuvres plus faciles l'ouverture et la fermeture de la cloche, ainsi que l'orientation mécanique du cylindre intérieur avec une précision angulaire de quelques minutes. On a adapté un variateur de vitesse à moteur asynchrone synchronisé permettant d'obtenir, avec la stabilité que donne le secteur, une vitesse de rotation constante du tambour. Des vérifications avant et après chaque série de mesures ont montré que dans la plupart des cas cette précision est de l'ordre de 0,2 à 0,4 %.

Par ailleurs, une étude séparée au moyen d'un petit condensateur auxiliaire très maniable reproduisant sensiblement les conditions géométriques de l'appareil, a permis de déterminer la forme la plus favorable à donner aux porte-sources et aux surfaces avoisinantes pour que la plus grande concentration possible d'ions soit réalisée dans l'intérieur du cylindre A au voisinage immédiat de la fente F.

Cette condition est essentielle pour obtenir, malgré de très grosses pertes, un courant mesurable au moyen de sources de polonium dont l'intensité ne dépasse pas sensiblement un millier d'U. E. S., et

sans utiliser un champ auxiliaire en deçà de la fente.

Des mesures systématiques effectuées, les unes sur le petit condensateur, les autres sur l'Analyseur, m'ont permis de constater que l'interposition du cylindre mobile constituant un écran grillagé, et sa mise en rotation, avaient pour effet de réduire le courant collecté dans un rapport voisin de cent.

D'autre part, la théorie de l'appareil suppose que les ions pénètrent uniquement par diffusion dans l'intervalle A, B où ils sont captés par le champ électrique sans vitesse initiale. Cette condition n'était pas respectée dans les premiers essais où la source unique, de quelques centaines d'U. E. S., se trouvait placée latéralement sur un support métallique solidaire d'une électrode centrale portée à un potentiel différant de celui de A d'une valeur approximativement égale à U : ainsi les champs de part et d'autre de F étaient concordants et sensiblement égaux, de l'ordre de 30 V/cm.

Il résulte de nombreux essais effectués sur le condensateur auxiliaire, que les conditions les plus favorables sont réalisées en plaçant deux sources d'environ un millier d'U. E. S. chacune, allongées parallèlement à la fente F, sur des supports isolants verticaux et symétriques, constituant des écrans en biseau. La figure 2 représente une coupe schématique de ce dispositif : l'écartement des arêtes et leur distance à F sont calculés de manière que les rayons α soient juste arrêtés très près des bords de la fente sans qu'aucun d'eux puisse la traverser ; et la configuration du double porte-sources est telle que les rayons qui se croisent derrière l'écran soient presque en fin de parcours, c'est-à-dire au stade de leur pouvoir d'ionisation maximum.

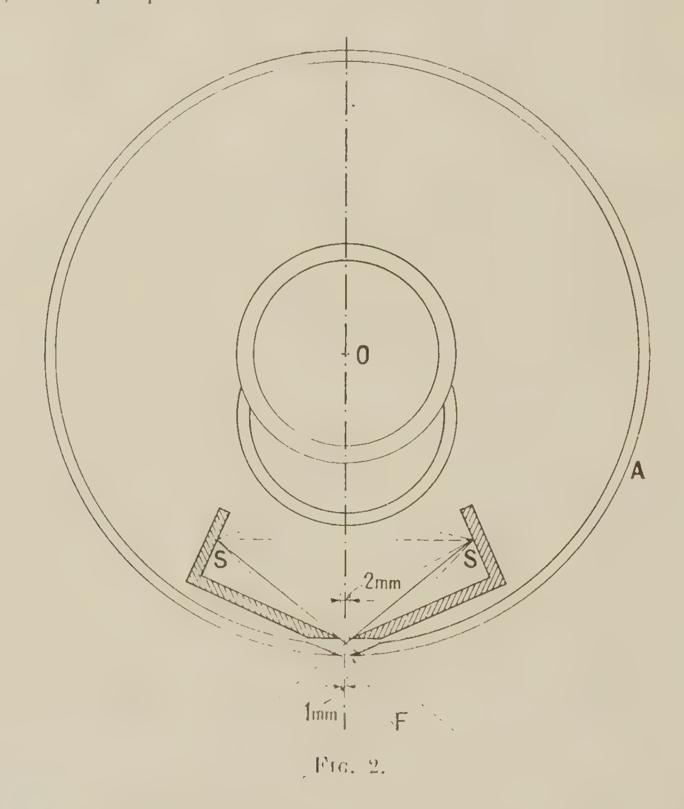


Fig. 2.

***

Des séries de mesures du courant d'ionisation ont été effectuées dans ces conditions sur les ions de l'air, d'une part à différence de potentiel constante pour diverses valeurs de la vitesse de rotation du cylindre mobile, d'autre part à vitesse constante pour diverses valeurs de la différence de potentiel U. On a renouvelé avant chaque série de mesures l'actigel placé dans la partie la plus intérieure de l'appareil, de manière à maintenir un état hygrométrique sensiblement constant. Aucun champ auxiliaire n'a été utilisé pour l'étude des ions négatifs. Dans le cas des ions positifs l'intensité du courant étant, toutes autres conditions identiques, nettement inférieure à celle du courant négatif, on a ajouté, afin d'avoir des maxima de grandeurs comparables, une faible différence de potentiel v de l'ordre d'une fraction de volt, entre le conducteur axial O et le cylindre A ; cela correspond à un champ de quelques centièmes de V/cm, qui ne pénètre certainement pas dans l'intervalle A, B et ne peut donc perturber la trajectoire des ions : ce fait a été vérifié par des mesures qui ont donné, au maximum de la courbe, exactement la même valeur

de θ, que v soit nul ou de l'ordre de grandeur indiqué. Ce champ auxiliaire est rendu plus directif au moyen d'une courbure accentuée du conducteur O dans l'azimut commun du diaphragme de plexiglas et de la fente-source.

L'intensité du courant a été mesurée par un électromètre Compton réglé sur une sensibilité au potentiel de l'ordre de 10 m/V.

***

Dans toutes les courbes, on a porté en abscisses l'angle θ compté positivement dans le sens de rotation du cylindre mobile, et en ordonnées une quantité proportionnelle à l'intensité du courant.

Les courbes de la figure 3 qui concernent les ions négatifs, ont été effectuées à différence de potentiel constante $U = 100$ volts pour diverses valeurs de la vitesse de rotation exprimée en nombre de tours par seconde $N = \omega/2\pi$. N a varié entre 0,5 et 2 t/s.

Ces courbes appellent un certain nombre de remarques :

1. Elles présentent un maximum assez aigu, et d'autant plus élevé que la vitesse de rotation est plus faible ;

2. Elles ne sont pas exactement symétriques, et la dissymétrie s'accentue, avec un élargissement progressif de la base quand la vitesse augmente. Il faut noter que pour les faibles intensités, au-dessous de 2 cm environ de l'échelle des ordonnées, la précision des mesures devient très médiocre.

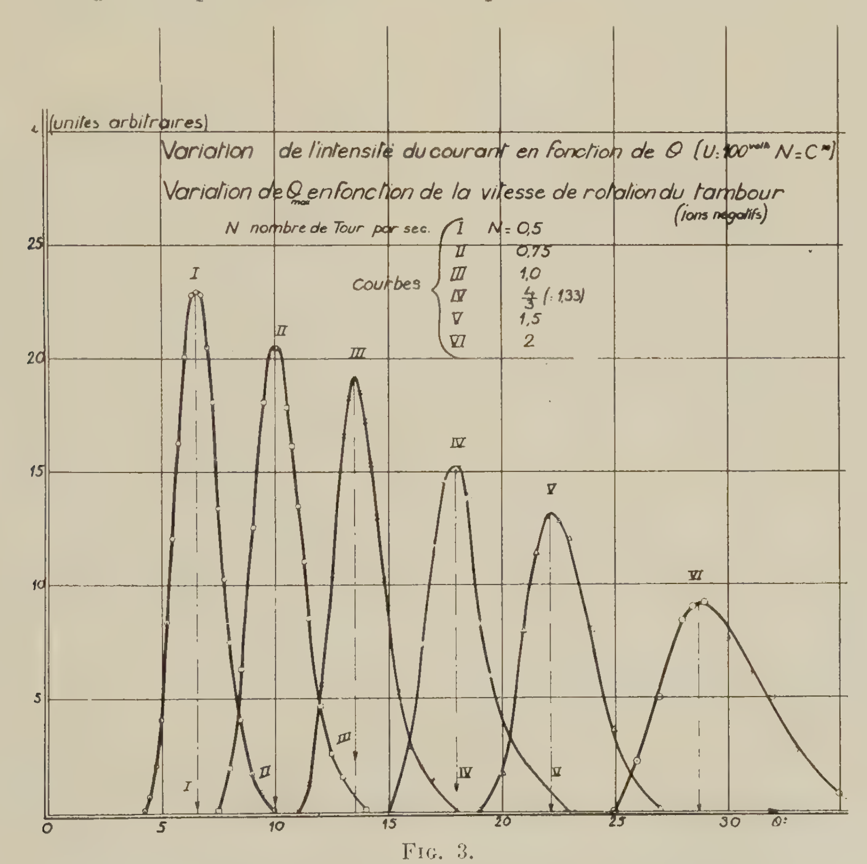


Fig. 3.
En abscisse, angle θ en minutes, en ordonnée intensité i.

3. Cet étalement est nettement plus marqué du côté positif, c'est-à-dire dans le sens de la rotation. Il semble que la partie « avant » du faisceau subisse, par l'entraînement du gaz, un élargissement dû sans doute à un effet de diffusion plus important, en raison de son inclinaison plus marquée par rapport à la ligne idéale médiane (*fig.* 4).

Il y a donc intérêt, pour effectuer des mesures de mobilités, à utiliser des vitesses faibles, bien inférieures à la limite imposée par le nombre de Reynolds, limite qui serait ici de l'ordre de 3 t/s.

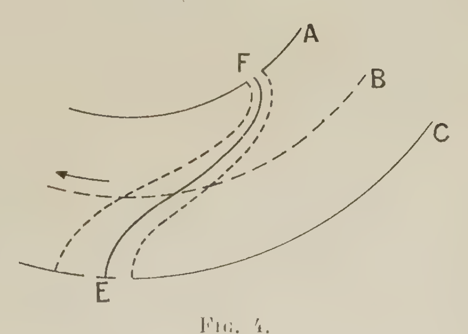


Fig. 4.

Des expériences portant sur des phénomènes tout différents confirment que des amorces de tourbillons se produisent nettement en deçà de la vitesse limite, et perturbent le caractère laminaire du mouvement du fluide, sur lequel se fonde la théorie de l'Analyseur.

Les mesures effectuées sur les ions positifs ont donné des résultats analogues, avec un décalage en azimut correspondant à la différence de mobilités des ions des deux signes, mais la largeur des courbes, pour une même vitesse, est toujours plus grande que pour les ions négatifs.

L'étude de la variation de l'intensité de courant en fonction de la différence de potentiel U à vitesse constante donne des courbes d'allure générale semblables aux précédentes, et conduit essentiellement aux conclusions suivantes :

En l'absence de tout champ auxiliaire ou pour de faibles valeurs de v, il n'est possible de faire varier U que dans un intervalle assez limité ; en effet :

pour $U < 60$ V environ, c'est-à-dire pour un champ inférieur à 20 V/cm, il est extrêmement difficile de capter des ions diffusés, et cet effet est beaucoup plus marqué avec les ions positifs, le courant devenant très faible et les mesures très imprécises ;

pour $U > 100$ V environ, le faisceau des ions diffusés, de mieux en mieux entraîné par le champ, tombe sur le cylindre extérieur C à une distance de plus en plus faible de l'azimut de F, c'est-à-dire que l'angle θ devient de plus en plus petit ; la formule (1) montre que pour conserver dans ces conditions à θ une valeur convenable, par exemple peu inférieure à une dizaine de degrés, il faudrait augmenter en rapport la vitesse de rotation, ce qui est impossible pour la raison précisée plus haut.

Les valeurs de mobilités calculées par application de la formule (1) en prenant pour θ max. les valeurs relevées sur les diverses courbes expérimentales sont, à 1 % près :

$k = 1{,}70$ cm/sec par volt/cm pour les ions négatifs
$k = 1{,}13$ cm|sec par volt|cm pour les ions positifs.

Ces valeurs sont parmi les plus faibles relevées dans la littérature ; des expériences en cours sur l'air très sec conduiront peut-être à des chiffres plus élevés.

***

On sait qu'un point fondamental dans l'étude des mobilités est de se rendre compte si une courbe expérimentale met en évidence l'existence d'une mobilité unique ou très prépondérante, ou bien celle de mobilités variables de manière continue.

Il semblerait que les courbes de la figure 3 puissent être interprétées aussi bien dans un sens que dans l'autre, la mobilité correspondant au maximum étant certainement prépondérante mais peut-être non pas unique.

Toutefois, nous avons déjà noté que l'élargissement de la courbe, et surtout l'étalement du pied, est d'autant plus marqué que la vitesse d'entraînement du gaz est plus grande : ceci est dû évidemment aux conditions de fonctionnement de l'appareil et ne saurait être attribué à la production de sortes d'ions de plus en plus nombreuses dans la région intérieure au cylindre A.

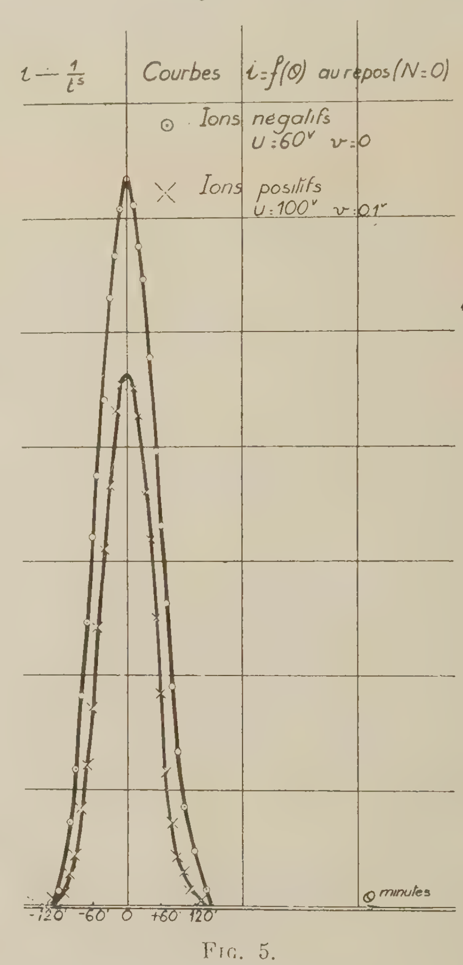


Fig. 5.

Il est particulièrement intéressant à ce point de vue de comparer les courbes obtenues en rotation, à celles de « repos » correspondant à $N = 0$. La figure 5 montre que les courbes tracées dans ces conditions, aussi bien pour les ions positifs que pour les négatifs, présentent une allure de « dispersion » tout à fait analogue, avec seulement une base plus étroite : l'intervalle angulaire des points extrêmes est de l'ordre de 5 degrés alors qu'on note environ 5,75° pour $N = 0{,}5$; 6,5° pour $N = 0{,}75$; 7° pour $N = 1$, etc....

Or il est bien évident qu'en l'absence de rotation

toutes les catégories d'ions présents dans le gaz se trouvent superposées sur les mêmes trajectoires, l'ensemble de celles-ci représentant simplement l'image de répartition des lignes de force du champ. Cette image se trouve transportée et un peu élargie du fait de l'entraînement par le gaz, mais sans être réellement « dispersée ». Si en effet on regarde les choses de plus près encore et si on mesure, en tenant compte de la différence d'échelle des abscisses, l'intervalle angulaire au niveau de la demi-hauteur, on constate que cet intervalle a la même valeur, de l'ordre de 2 degrés, sur les courbes $N = 0$ et $N = 0{,}5$ et qu'il augmente ensuite peu à peu par le mécanisme d'élargissement du faisceau qui a été signalé.

D'autres expériences sont en cours de préparation pour préciser ce point délicat et pour étudier le « pouvoir séparateur » de l'appareil : ces expériences seront effectuées sur des gaz purs présentant des mobilités nettement différentes, puis sur des mélanges de ces gaz.

Manuscrit reçu le 15 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] LANGEVIN (P.), *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 177, 225 257.

[2] MONTEL (Mme E.) et OUANG (M. T. T.), *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 1543 ; *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 586.

REVUE DES LIVRES

STURROCK (P. A.), **Optique électronique statique et dynamique. (Static and Dynamic Electron Optics.)** 1 vol. 14 × 22 cm, 239 pages, Cambridge University Press, 1955, 30/s.

Dans la série bien connue et appréciée des monographies des « Cambridge University Press » P. A. Sturrock Ph. D. publie cette « Optique électronique, statique et dynamique ».

L'ouvrage est divisé en deux grandes parties. La première « Optique électronique statique », traite le problème de la focalisation de particules chargées dans des champs électromagnétiques statiques. La seconde partie « Optique électronique dynamique » au contraire est consacrée aux problèmes de la focalisation de particules chargées dans des champs électromagnétiques variables dans le temps, comme on en rencontre dans les accélérateurs de particules.

Nous trouvons cinq chapitres dans la première partie : Dans le chapitre 1 on établit l'équation qui définit la trajectoires des électrons (on écrit que cette trajectoire est stationnaire) ; deux exemples d'application de cette équation sont donnés (lentille électrostatique et lentille magnétique). Le chapitre 2 est consacré à l'optique géométrique classique où l'on reprend les méthodes de l'optique « lumineuse » utilisables en optique électronique ; les trois derniers chapitres sont consacrés à l'optique instrumentale avec application à l'étude des systèmes ayant un axe de révolution (propriétés des images issues de rayons paraxiaux, aberrations...) et à l'étude des systèmes ayant un plan de symétrie (par exemple les spectromètres β, les spectromètre de masse...).

La deuxième partie comprend deux chapitres consacrés aux problèmes de « focalisation constante » et aux problèmes de « focalisation périodique » dans les accélérateurs de particules.

Court mais clair et accessible, cet ouvrage est complété par une table et un index bien faits. Il est en outre matériellement bien présenté.

J. BADOZ.

BARRIOL (J.), **La constitution des molécules** (1 vol. relié 16 × 25 cm, 258 pages, 80 figures, tableaux. Gauthier Villars, Paris, 1958. Prix 2 100 F.)

Un excellent ouvrage donnant les applications de la mécanique quantique aux divers problèmes intéressant les chimistes. Très simple, très clair, avec figures et schémas, les étudiants (à qui cet ouvrage s'adresse) ne pourront faire un meilleur choix. Ils y trouveront exposés les récents travaux des écoles de Pauling et de Mund-Mulliken. Voici un sommaire des chapitres : notions de mécanique ondulatoire, atome de Bohr, liaisons ionique et covalente, données expérimentales, mésomérie, théorie des ions complexes de Pauling, orbitales moléculaires, liaisons métallique et intermoléculaire.

J. WINTER.

MESSIAH (A.), **Mécanique quantique.** Tome 1er. (1 vol. relié, 16 × 25 cm, 446 p., Dunod, Paris, 1959. Prix 3 900 F.)

Une première partie (287 pages) est consacrée au formalisme et à son interprétation. Les principes de base et les connaissances mathématiques requises sont exposés avec une grande clarté. Opérateurs hermitiques, notation de Dirac, représentation de Schrœdinger et Heisenberg, etc... Une deuxième partie (104 pages) donne les principales applications simples : Décomposition de l'équation d'ondes en coordonnées polaires, problèmes de diffusion, oscillateur harmoniques. Enfin des annexes : théorie des distributions, fonction δ et fonctions spéciales nécessaires. Ce livre s'adresse à des théoriciens et à des mathématiciens ; les fondements ont un développement très considérable, et les applications (tout au moins pour ce premier tome) n'englobent que peu de cas. Mais les amateurs de rigueur et de clarté seront très satisfaits.

J. WINTER.

RADIOACTIVITÉ ARTIFICIELLE DANS LA STRATOSPHÈRE

Par CÉLESTINE JEHANNO et JACQUES LABEYRIE
Centre d'Études Nucléaires de Saclay, Service d'Électronique Physique.

Résumé. — Une mesure de concentration de l'air en poussières radioactives β d'origine artificielle a été effectuée jusqu'à 12 000 mètres d'altitude dans la région parisienne, dans la matinée du 20 novembre 1958. La teneur moyenne mesurée en émetteurs β portés par des poussières est 220 fois plus élevée par unité de poids d'air que la teneur mesurée au sol le même jour.

Abstract. — A measurement of the concentration of radioactive beta products of artificial origin in the dust of atmospheric air was made up to 12 000 metres (39 500 feet) altitude in the Paris region on November 20th 1958 during the morning.
The beta activity carried by the dust was on average 220 times higher per unit weight of air than the activity measured on the ground on the same day.

Introduction. — Les explosions nucléaires dispersent dans l'atmosphère, sous forme d'aérosols, des résidus radioactifs dont les retombées à la surface du sol et de la mer posent un certain nombre de problèmes aux biologistes en général, et aux généticiens en particulier. La contamination de l'air au niveau du sol et de l'eau des précipitations est due à ces aérosols qui se propagent à la surface du globe, en gros de deux manières : tout d'abord les résidus qui ont été formés dans la troposphère et qui circulent avec les courants atmosphériques de basse altitude sont collectés par les nuages ou par la pluie et la neige circulant entre ceux-ci et la surface. On estime que cette contamination par les couches de basse altitude peut se propager à plusieurs milliers de kilomètres du lieu de l'explosion. Après une explosion on peut constater des pluies, neiges, etc... activées par celle-ci pendant une durée qui est de l'ordre de grandeur du mois.

La seconde manière de contaminer le globe se fait par l'intermédiaire des résidus qui ont été entraînés dans la stratosphère lors de l'explosion et qui, par décantation et diffusion, descendent peu à peu dans la troposphère.

Selon Libby, les explosions dont la puissance est inférieure à l'équivalent de 1 mégatonne de T. N. T, sont en général considérées comme « troposphériques »; celles dont la puissance dépasse l'équivalent de 1 mégatonne de T. N. T., c'est-à-dire la grande majorité à l'heure actuelle, entraînent leurs résidus dans la stratosphère [1 et 2]. L'essentiel des résidus radioactifs se trouvent donc envoyés dans la stratosphère. Comment s'y comportent-ils ?

D'après le rapport Sunshine, la décantation dans la stratosphère, suit en gros la loi de Stokes ; elle est extrêmement rapide au-dessus de 50 kilomètres : une particule de 1 micron descend de l'altitude 50 km à l'altitude 40 km en 15 jours, par contre cette même particule mettra près de 200 jours à descendre de l'altitude 30 km à l'altitude 20 km [3]. Or, les nuages et précipitations variées nettoient seulement la partie de l'atmosphère qui est comprise entre la surface et une altitude de 10 km environ. Il en résulte qu'il existe dans les premiers kilomètres de la stratosphère une concentration importante de produits de fission une sorte de « réservoir » d'aérosols radioactifs qui recouvre probablement la totalité du globe maintenant, et dont la richesse s'accroît sans cesse tout au moins en produits de fission à longue période, tels que le césium 137 qui a une période de 33 ans, ou le strontium 90 qui a une période de 20 ans. Le rapport du Comité Scientifique de l'O. N. U. admet que si aucune explosion ne se produit plus, la concentration de ce réservoir en produit à vie très longue diminuera de moitié tous les 7 ans seulement par lente diffusion dans la troposphère [1].

Les estimations des biologistes sur l'influence future possible de ces corps radioactifs ne peuvent se faire correctement, par conséquent, que si l'on connaît la concentration dans ce réservoir avec une bonne approximation.

Nous avons donc décidé de lancer une première série de mesures destinées à nous donner des valeurs de cette concentration tout au moins au-dessus de la France.

En vue d'une ascension de ballons organisée par M. Audoin Dolfus et le C. A. S. D. N., et prévue pour atteindre 20 kilomètres d'altitude, dans le courant du mois de novembre 1958, nous avons disposé dans la nacelle de l'aérostat un dispositif de collection des concentrations d'aérosols radioactifs très voisin de celui utilisé au sol. Il comporte essentiellement un petit aspirateur portant un filtre de section 100 cm² ayant un rendement de collection voisin de 65 %, alimenté par une batterie d'accumulateurs à l'argent-zinc. La charge de cette batterie était prévue pour que l'aspiration dure trois heures et que le filtre collecte l'activité contenue dans 40 mètres cubes d'air environ. L'ensemble pesait 4 kilos.

Le 20 novembre, à 7 h 50, par un temps très

calme, la grappe de 30 ballons gonflés à 7 m³ environ au départ quittait avec sa nacelle le terrain de Villacoublay, à 20 km S.-O. de Paris.

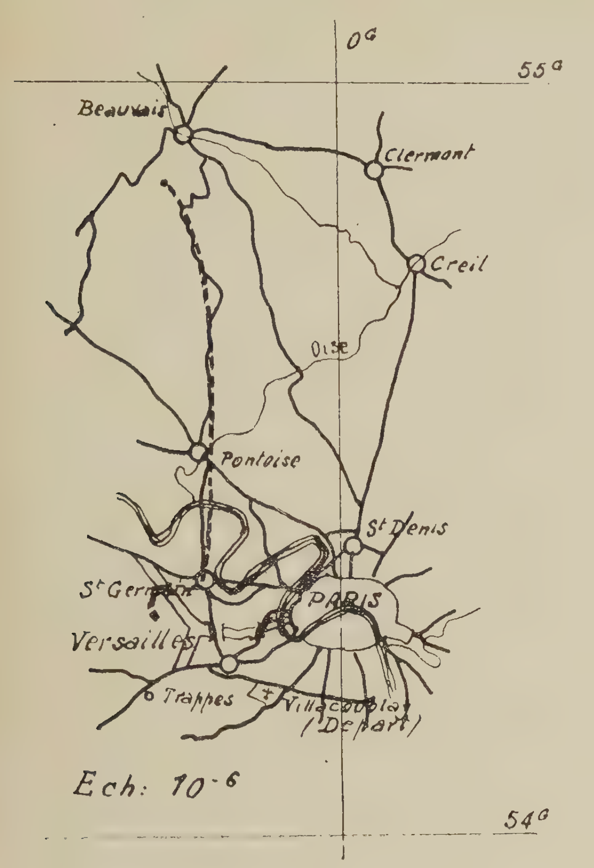


FIG. 1. — En pointillé, vol stratosphérique du 20 novembre 1958 (projection au sol).

L'ensemble d'aspiration avait été mis sous tension avant le départ et l'examen ultérieur a permis de conclure qu'il s'était arrêté peu de temps avant de revenir au sol. Le volume collecté par unité de temps est, à 10 % près, indépendant de la pression. Il y a donc eu intégration, sur le filtre, des aérosols contenus dans l'ensemble du volume d'air où a voyagé la nacelle. Le radar Cotal de l'Observatoire de Trappes a repéré la position de l'aérostat aussitôt le lâcher et cette position a ensuite été donnée, de minute en minute, pendant toute l'ascension. Après 3 heures de vol et après avoir atteint l'altitude de 11 200 mètres, l'aérostat était au sol près de Clermont à 50 kilomètres au Nord de Paris. Nous indiquons sur la figure 1 la projection au sol du trajet de l'aérostat ; sur la figure 2 sont indiquées les différentes altitudes où il se situait en fonction du temps, et sur la figure 3 on a indiqué le volume d'air filtré pendant le séjour dans une couche épaisse de 1 km en fonction de l'altitude. Ce

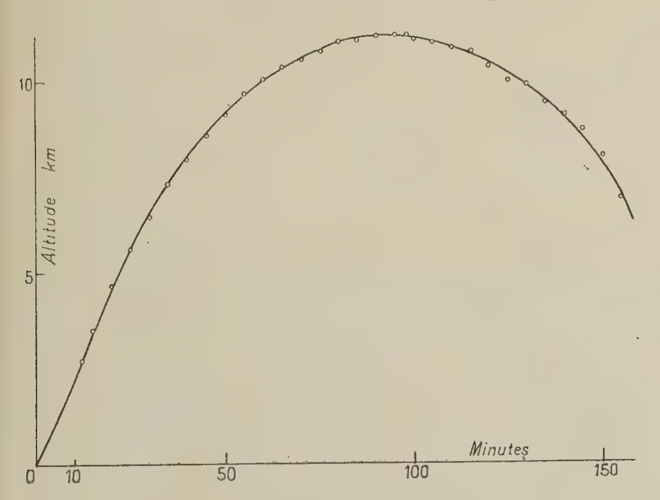


FIG. 2. — Courbe temps-altitude.

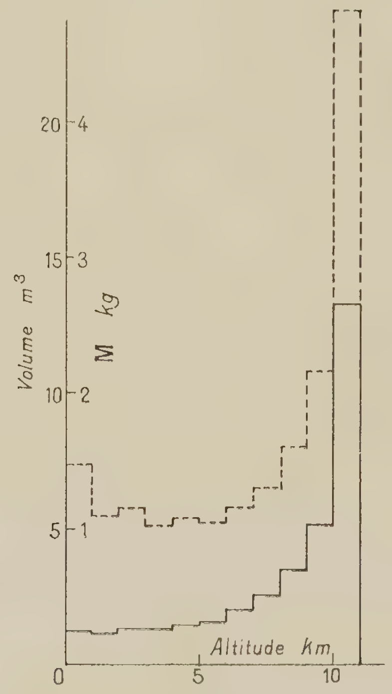


FIG. 3. — Masses d'air prélevées par tranches de 1 km.

20 novembre la limite stratosphérique se situait aux environs de 9 000 mètres d'altitude. Le filtre a donc séjourné environ 90 minutes dans la stratosphère, sur une durée de fonctionnement totale de 170 minutes, et a filtré 18 m³ dans la stratosphère sur un total de 35 m³ d'air. L'activité du filtre a été analysée à partir du lendemain 21 novembre.

La radioactivité β a été mesurée à l'aide d'un photomultiplicateur muni d'un cristal de tétraphénylbutadiène, et d'un ensemble de comptage à impulsions.

Le filtre a collecté 2570 μμ curie de radioactivité β. La radioactivité artificielle au niveau du sol le 20 novembre était de 1 μμ c/m³ d'air et on a admis que jusqu'à 5 000 mètres les concentrations dans l'air étaient de cet ordre. La concentration moyenne

entre 5 000 et 11 000 mètres était donc de 91 μμ c/m³ d'air.

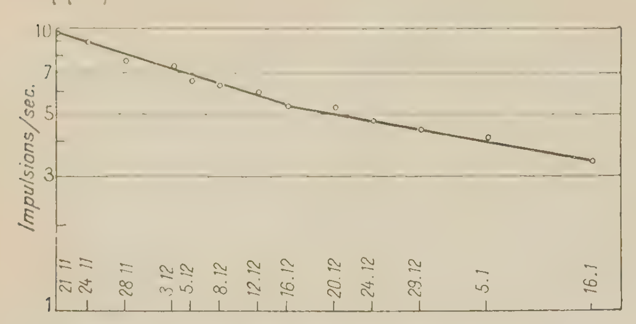


Fig. 4. — Décroissance de la radioactivité β.

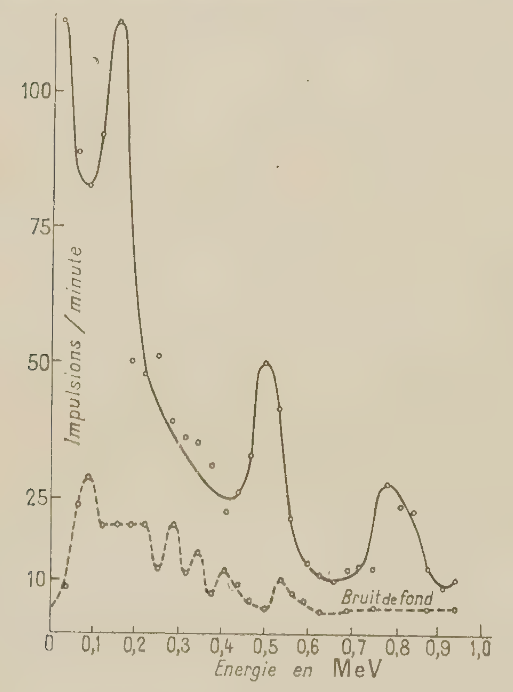


Fig. 5. — Spectre γ.

En comparant les concentrations par unité de poids d'air nous avons : au sol : 0,77 μμ curie/kg d'air ; valeur moyenne entre 5 000 et 11 000 m : 174 μμ curie/kg d'air.

La période apparente de la radioactivité β était de 25 jours au début de la décroissance.

Aucune radioactivité α n'a pu être décelée bien que la limite de sensibilité de l'appareillage de mesure utilisé eut permis la détection de moins de 0,1 μμ c/m³ d'air.

La radioactivité γ a été analysée à l'aide d'un spectrographe dont la tête de détection est un photomultiplicateur muni d'un cristal d'iodure de sodium activé au thallium. La faiblesse de l'activité γ collectée (due au faible volume total filtré) n'a permis de détecter avec certitude que quatre éléments :

Ce^{141}	γ 0,145 MeV	période 32 jours
Ru^{103}	γ 0,5 MeV	période 40 jours
Zr^{95}	γ 0,72 ; 0,75 MeV	période 65 jours
Nb^{95}	γ 0,76 MeV	période 35 jours

Ces éléments sont les mêmes que ceux que l'on trouve au niveau du sol.

Conclusion. — Cette première mesure a permis de collecter en quantités très mesurables des éléments radioactifs au voisinage de la limite troposphère-stratosphère. 99,6 % de l'activité collectée au total a été prélevée au-dessus de 5 000 mètres.

La composition radioactive des aérosols est la même que celle trouvée au niveau du sol.

Le résultat le plus intéressant est que, dans cette mesure, le 20 novembre 1958 au-dessus de Paris l'activité spécifique moyenne d'un m³ d'air au-dessus de 5 000 mètres est au moins 90 fois supérieure à celle qui existe au niveau de la mer, et celle d'un kilogramme d'air est au moins 220 fois supérieure. Ces rapports sont encore à majorer du fait que l'on a estimé que le nettoyage par les nuages n'avait lieu que jusqu'à 5 000 mètres et, d'autre part du fait que l'on n'a pas tenu compte de la colonne d'air chaud qui surmonte la région parisienne et qui amène de l'air du sol en haute altitude.

Par ailleurs, ces résultats sont comparables à ceux qui ont été publiés par la Norvège en 1957 [4].

La prochaine mesure s'effectuera en déclenchant l'aspiration à des niveaux prédéterminés sur des filtres séparés : on n'aura plus ainsi à faire d'hypothèse sur la répartition de l'activité spécifique.

Manuscrit reçu le 24 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Libby (W. F.), *Proc. Nat. Acad. Sc.*, U. S. A., 1956, **42**, 945-962.
[2] Libby (W. F.), *Proc. Nat. Acad. Sc.*, U. S. A., 1957, **43**, 758-775.
[3] Project Sunshine, R-251, A. E. C., Washington 1953, August 6.
[4] Hvinden (T.), Forsvarets Forsknings Instituitt NDRE-DIV. F NORVEG. Rapport IR-F. 350, nov. 1957

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DE LA RÉFLEXION DE L'INFRAROUGE LOINTAIN PAR LES RÉSEAUX ÉCHELETTE

Par MM. Armand HADNI, Christian JANOT et Edmond DECAMPS

Résumé. — Nous avons essayé d'expliquer pourquoi un réseau Echelette utilisé dans l'ordre zéro comme filtre pour la région de 150 μ à 300 μ se comportait différemment suivant les positions relatives du plan d'incidence et du plan de section principale du réseau.

Abstract. — The diffraction problem of the echelette grating is considered by an approximate method for both positions of the principal section plane of the grating relative to the incidence plane : parallel and perpendicular. We explain why the zero order is larger in the second case and derive an accurate use of echelette gratings as zero order filters in the far infrared. The theory is verified by experiments with different gratings.

A. Formules d'un réseau plan dans le cas le plus général.

I. **Conventions et définitions.** — Nous conviendrons de rapporter la surface du réseau à deux axes rectangulaires Ox, Oy de telle sorte que Oy soit parallèle aux traits du réseau. Nous appellerons alors le plan formé par Ox et la normale Oz au réseau *le plan de section principale.*

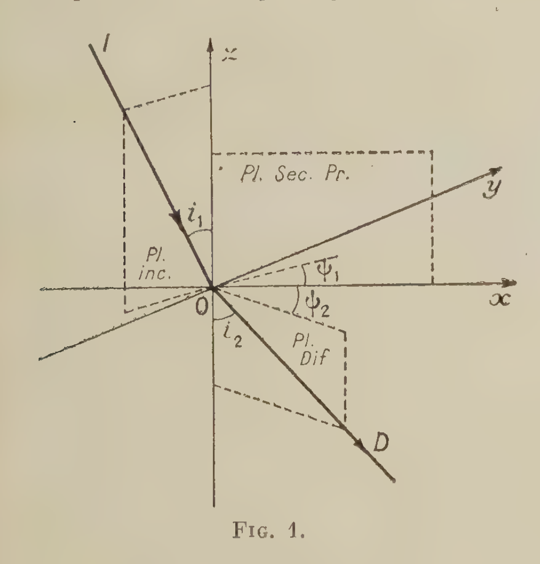


Fig. 1.

Étant donné un rayon incident OI, il sera défini par les angles α_1 β_1 i_1 qu'il fait respectivement avec les axes Ox, Oy et Oz. Les droites Oz, OI définissent le *plan d'incidence.* Nous appellerons ψ_1 l'angle de l'axe Ox avec la trace du plan d'incidence dans le plan xOy. Nous définirons de la même façon, pour un rayon diffracté OD, les angles α_2 β_2 i_2 et ψ_2 ainsi que le *plan de diffraction* (*fig.* 1).

Nous aurons donc le groupe de relations :

$$\cos\alpha_1 = \sin i_1 \cos\psi_1 \, ; \quad \cos\alpha_2 = \sin i_2 \cos\psi_2$$
$$\cos\beta_1 = \sin i_1 \sin\psi_1 \, ; \quad \cos\beta_2 = \sin i_2 \sin\psi_2. \qquad (1)$$

Nous adopterons les conventions de signe suivantes : les angles relatifs au rayon incident seront positifs, et les angles relatifs au rayon diffracté seront positifs ou négatifs suivant qu'ils seront de même sens ou de sens contraire aux angles correspondants du rayon incident. Par exemple, sur la figure 1, i_1 est positif et i_2 positif ; sur la figure 2, i_1 est positif et i_2 négatif.

II. **Diffraction par une bande réfléchissante rectangulaire appartenant au réseau.** — Le plan xOy devient le plan de la bande. Soient a et b les deux dimensions du rectangle, respectivement suivant Ox et Oy. Les différences de marche totales pour ces deux dimensions sont respectivement :

$$\Delta_a = a\,(\cos\alpha_1 + \cos\alpha_2)$$
$$\Delta_b = b\,(\cos\beta_1 + \cos\beta_2). \qquad (2)$$

L'intensité diffractée en fonction de la direction i_2, ψ_2 est donc régie par la relation :

$$I = I_0 \left\{ \frac{\sin \dfrac{\pi a\,(\cos\alpha_1 + \cos\alpha_2)}{\lambda}}{\dfrac{\pi . a\,(\cos\alpha_1 + \cos\alpha_2)}{\lambda}} \right\}^2 \qquad (3)$$
$$\left\{ \frac{\sin \dfrac{\pi b\,(\cos\beta_1 + \cos\beta_2)}{\lambda}}{\dfrac{\pi b\,(\cos\beta_1 + \cos\beta_2)}{\lambda}} \right\}^2 .$$

Les directions d'éclairement maximum sont celles données par l'une *ou* l'autre des relations suivantes :

$$a\,(\cos\alpha_1 + \cos\beta_2) = k\,\lambda$$
$$b\,(\cos\beta_1 + \cos\beta_2) = k'\lambda. \qquad (4)$$

Ces relations définissent deux familles de cônes circulaires, respectivement coaxiaux.

Le phénomène se simplifie dans le cas où l'un des côtés b par exemple, est beaucoup plus long que

l'autre. Dans ce cas, il n'existe pratiquement pas de lumière en dehors des directions

$$\cos \beta_1 + \cos \beta_2 = 0 \qquad (4)$$

et la relation (3) devient :

$$I = I_0 \left\{ \frac{\sin \dfrac{\pi \alpha (\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2)}{\lambda}}{\dfrac{\pi a (\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2)}{\lambda}} \right\}^2. \qquad (3')$$

III. **Réseau plan.** — Considérons maintenant un ensemble de N facettes réfléchissantes de largeur a, situées dans un même plan xOy et séparées l'une de l'autre par des espaces non réfléchissants. Soit b la période du réseau schématique ainsi constitué. Considérons un point O′ de coordonnées xy dans le plan xOy. La différence de marche à l'infini pour deux rayons parallèles diffractés en O et O′ sera :

$$\Delta = x(\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2) + y(\cos \beta_1 + \cos \beta_2) \qquad (5)$$

et la différence de phase, $\psi = 2\pi\Delta/\lambda$.

Les directions d'éclairement maximum seront déterminées par les relations de concordance de phase :

$$(6) \quad \begin{cases} x (\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2) = k_1 \lambda & (a) \\ y (\cos \beta_1 + \cos \beta_2) = k_2 \lambda. & (b) \end{cases}$$

Mais y est ici une variable continue et il n'y aura de direction d'éclairement maximum que pour $k_2 = 0$.

Par contre, x est une variable périodique, de période b et il suffira que pour $x = b$, la relation (6a) soit vérifiée. Les relations (6) deviennent donc :

$$\begin{cases} b (\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2) = k \lambda \\ \cos \beta_1 + \cos \beta_2 = 0. \end{cases} \qquad (6')$$

Compte tenu des relations (1), (3′), (6′), l'intensité diffractée dans une direction (i_2, ψ_2) par un réseau simple s'écrit :

$$I = I_0 \frac{\sin (N \varphi/2)}{\sin (\varphi/2)}$$ (N étant le nombre total des traits du réseau)

$$I = I_0 \left\{ \frac{\sin \pi a \left(\dfrac{\sin i_1 \cos \varphi_1 + \sin i_2 \cos \alpha_2}{\lambda}\right)}{\pi a \left(\dfrac{\sin i_1 \cos \varphi_1 + \sin i_2 \cos \alpha_2}{\lambda}\right)} \right\}^2 \qquad (7)$$

$$\left\{ \frac{\sin N \pi b \left(\dfrac{\sin i_1 \cos \varphi_1 + \sin i_2 \cos \varphi_2}{\lambda}\right)}{\sin \pi b \left(\dfrac{\sin i_1 \cos \varphi_1 + \sin i_2 \cos \varphi_2}{\lambda}\right)} \right\}^2$$

avec $\sin i_1 \sin \psi_1 + \sin i_2 \sin \psi_2 = 0$.

Les relations (6′) montrent que les directions d'éclairement maximum constituent une gerbe conique [1] comprenant le rayon géométrique ($\cos \beta_1 + \cos \beta_2 = 0$; $\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2 = 0$).

B. Cas d'un réseau Echelette.

I. **Répartition de l'énergie dans les différents ordres.** — Dans le cas d'un réseau Echelette, nous allons considérer seulement la moitié des facettes. Chacune constitue une bande réfléchissante inclinée d'un angle ξ sur le plan du réseau, si bien que le système d'axe relatif à une facette se déduit du système d'axe relatif au réseau par une rotation d'angle ξ et d'axe Oy. Donc, en affectant d'un indice F les paramètres relatifs à une facette, nous aurons :

$$\begin{aligned} \cos \alpha_{1F} &= \cos \alpha_1 \cos \xi - \cos i_1 \sin \xi \\ \cos \alpha_{2F} &= \cos \alpha_2 \cos \xi - \cos i_2 \sin \xi \\ \cos \beta_{1F} &= \cos \beta_1 \\ \cos \beta_{2F} &= \cos \beta_2. \end{aligned} \qquad (8)$$

Les formules du réseau deviennent donc :

$$\begin{cases} I = I_0 \left\{ \dfrac{\sin \left[\dfrac{\pi a}{\lambda} \left\{ (\cos \beta_1 + \cos \alpha_2) \cos \xi - \sin \xi (\cos i_1 + \cos i_2) \right\}\right]}{\dfrac{\pi a}{\lambda} \{(\cos \alpha_1 \psi \cos \alpha_2) \cos \xi - \sin \xi (\cos i_1 + \cos i_2)} \right\}^2 \left\{ \dfrac{\sin (N \pi\Delta/\lambda)}{\sin (\pi\Delta/\lambda)} \right\}^2 & (a) \\ \Delta = b (\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2) \quad (b) \quad 0 = \cos \beta_1 + \cos \beta. & (c) \end{cases} \qquad (9)$$

Le problème de la répartition de l'énergie dans les différents ordres suivant la longueur d'onde consiste à étudier comment se comporte le terme d'une facette quand $\Delta = k \lambda$, c'est-à-dire la variation de

$$Y = \left\{ \frac{\sin \left[\dfrac{\pi a}{\lambda} \left\{ (\cos \alpha_{1F} + \cos \alpha_{2F}) \right\}\right]}{\dfrac{\pi a}{\lambda} (\cos \alpha_{1F} + \cos \alpha_{2F})} \right\}^2$$

quand $b (\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2) = k \lambda$
avec $\cos \beta_1 + \cos \beta_2 = 0$.

Compte tenu des valeurs calculées en (8) pour $\cos \alpha_{1F}$ et $\cos \alpha_{2F}$, nous pouvons écrire :

$$Y = \left\{ \frac{\sin \left[\dfrac{\pi a}{\lambda} \left\{ \dfrac{\cos k \lambda \xi}{b} - \sin \xi (\cos i_1 + \cos i_2 \right\}\right]}{\dfrac{\pi a}{\lambda} \left[\dfrac{\cos k \lambda \xi}{b} - \sin \xi (\cos i_1 + \cos i_2)\right]} \right\}^2$$

quand $b (\sin i_1 \cos \psi_1 + \sin i_2 \cos \psi_2) = k \lambda$
avec $\sin i_1 \sin \psi_1 + \sin i_2 \sin \psi_2 = 0$.

Nous avons précisé cette étude par le calcul et par l'expérience pour deux positions particulièrement intéressantes du réseau.

a) Plan d'incidence parallèle au plan de section principale (*fig.* 2). — C'est dans cette

position que sont généralement utilisés les réseaux. Dans ce cas, nous avons $\psi_1 = 0$.

Les relations précédentes deviennent alors :

$$\begin{cases} Y = \left\{ \dfrac{\sin \left[\dfrac{\pi a}{\lambda} \{ \sin (i_1 - \xi) + \sin (i_2 - \xi) \}\right]}{\dfrac{\pi a}{\lambda} \{ \sin (i_1 - \xi) + \sin (i_2 - \xi) \}} \right\}^2 \\ b (\sin i_1 + \sin i_2) + k \lambda \qquad \psi_2 = 0. \end{cases} \tag{10}$$

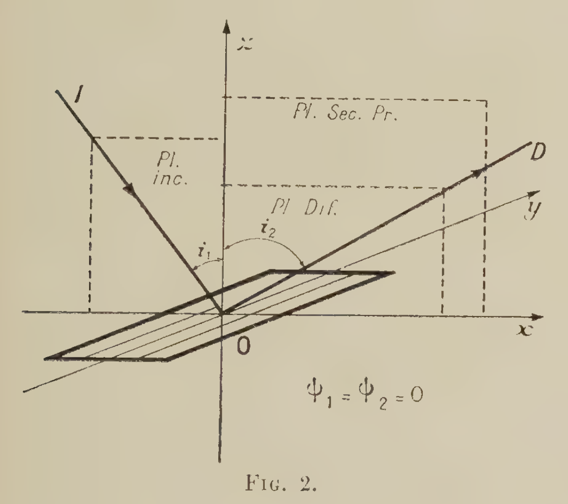


FIG. 2.

Il faut remarquer que dans un ordre donné, les longueurs d'onde resteront inférieures à une valeur maximum $(\lambda_M)_{//}$ correspondant à une direction de diffraction $i_2 = \pi/2$. Soit donc :

$$\lambda < (\lambda_M)_{//} = \frac{b}{k} (\sin i_1 + 1)$$

$$\nu > (\nu_M)_{//} = \frac{k}{b (\sin i_1 + 1)}.$$

Par ailleurs, la quantité Y atteindra sa valeur maximum quand l'argument du sinus sera nul et la variation de Y en fonction de λ se fera suivant le type $\sin u/u$ bien connu. Donc, dans un ordre donné, l'intensité sera maximum pour une longueur d'onde telle que :

$$\sin (i_1 - \xi) = - \sin (i_1 - \xi)$$

où $i_2 = - i_1 + 2\xi$ (direction de la réflexion spéculaire).

Compte tenu de la relation

$$b (\sin i_1 + \sin i_2) = k \lambda$$

on obtient finalement :

$$2b \sin\xi . \cos (i_1 - \xi) = k \lambda.$$

Par conséquent, la fréquence ν_B dans un ordre k sera :

$$(\nu_B)_{//} = \frac{k}{2b \sin \xi \cos (i_1 - \xi)}.$$

On retrouve la formule donnant les fréquences de miroitement d'un réseau Echelette utilisé dans les conditions usuelles [2] et le facteur de réflexion du réseau est représenté par la figure 3.

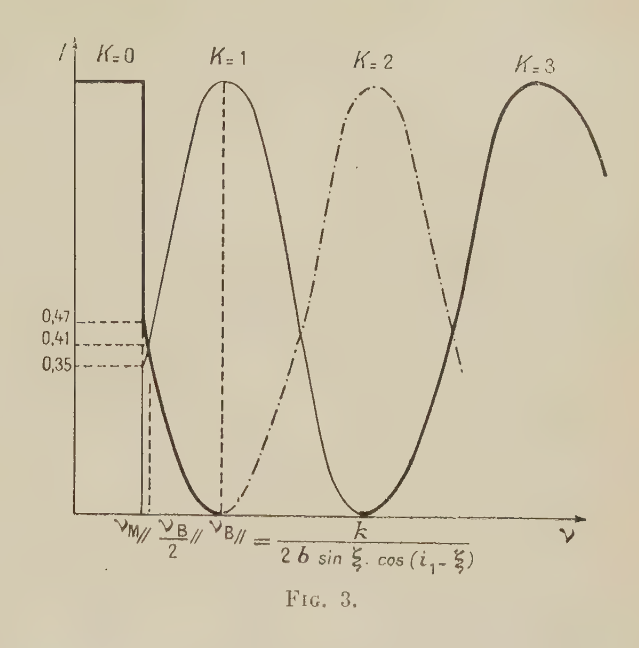


FIG. 3.

Nous pouvons remarquer que plus le réseau est attaqué sous une grande incidence, plus le domaine des longueurs d'onde passant dans l'ordre zéro avec une énergie supérieure à 50 % est étendu (les traits paraissent plus serrés).

b) PLAN D'INCIDENCE PERPENDICULAIRE AU PLAN DE SECTION PRINCIPALE (*fig.* 4). — Dans cette

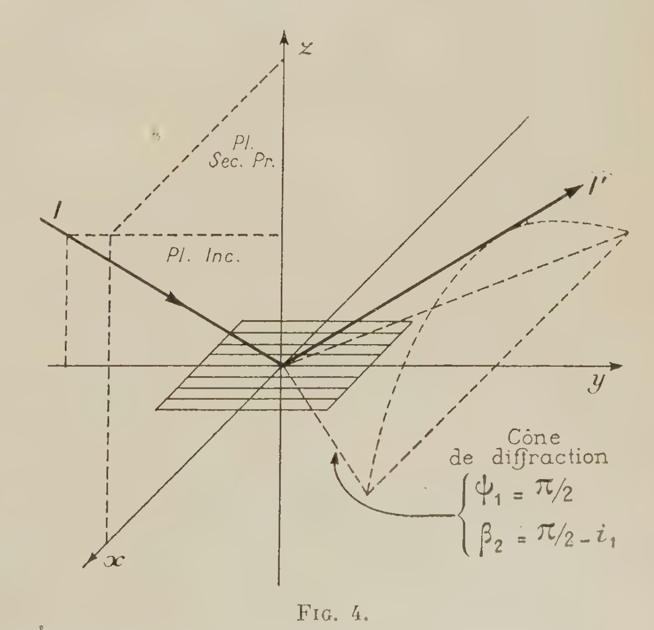


FIG. 4.

position du réseau, nous avons $\psi_1 = \pi/2$ et $\alpha_1 = \pi/2$ les formules deviennent alors :

$$\left\{\begin{array}{ll} Y \left(\dfrac{\sin\left[\dfrac{\pi a}{\lambda}\left\{\sin i_2 \cos \psi_2 \cos \xi - \sin \xi \, (\cos i_1 + \cos i_2)\right\}\right]}{\dfrac{\pi a}{\lambda}\left\{\sin i_2 \cos \psi_2 \cos \xi - \sin \xi \, (\cos i_1 + \cos i_2)\right\}} \right)^2 & (a) \\ b \sin i_2 \cos \psi_2 = k\lambda & (b) \\ \sin i_1 + \sin i_2 \sin \psi_2 = 0. & (c) \end{array}\right.$$

Dans un ordre donné, nous voyons que la variation de l'intensité avec la longueur d'onde est représentée par une courbe du même type que précédemment. Nous allons calculer la longueur d'onde $(\lambda_B)_\perp$ pour laquelle l'intensité est maximum dans l'ordre k, c'est-à-dire celle pour laquelle l'argument du sinus s'annule. Les 3 relations (11) nous donnent :

$$\begin{array}{lll} \cos i_1 + \cos i_2 = \dfrac{k(\lambda_B)_\perp}{b} \dfrac{1}{\operatorname{tg} \xi} & (a) & \\ \sin i_2 \cos \psi_2 = \dfrac{k(\lambda_B)_\perp}{b} & (b) & (12) \\ \sin i_1 + \sin i_2 \sin \psi_2 = 0. & (c) & \end{array}$$

Il s'agit, à l'aide de ces trois relations, d'exprimer $(\lambda_B)_\perp$ en fonction des données connues, relatives au rayon incident et au réseau, c'est-à-dire ξ et i_1.

La relation (12, b) nous donne :

$$\sin i_2 \quad \frac{k(\lambda_B)_\perp}{b \cos \psi_2}$$

d'où

$$\cos i_2 = \sqrt{1 - \frac{k^2 \lambda^2_{B\perp}}{b^2 \cos^2 \psi_2}}.$$

Les relations (12, b) et (12, c) nous permettent de tirer :

$$\operatorname{tg} \psi_2 = -\frac{b \sin i_1}{k(\lambda_B)_\perp}$$

comme

$$\frac{1}{\cos^2 \psi_2} = 1 + \operatorname{tg}^2 \psi_2 = 1 + \frac{b^2 \sin^2 i_1}{k^2 \lambda^2_{(B(\perp}}$$

$$\cos i_2 = \sqrt{1 \; k^2 \frac{(\lambda^2_B)_\perp}{b^2} - \sin^2 i_1}.$$

En portant cette valeur dans la relation (12, a), on obtient :

$$\cos i_1 + \sqrt{\cos^2 i_1 \frac{k^2 \lambda^2_{B\perp}}{b^2}} \quad \frac{k(\lambda_B)_\perp}{b} \cdot \frac{1}{\operatorname{tg} \xi}.$$

Toutes simplifications faites, on arrive à :

$$\begin{array}{lll} (\lambda_B)_\perp - \dfrac{b \cos i_1 \sin 2\xi}{k} & (a) & \\ & & (13) \\ (\nu_B)_\perp \quad \dfrac{k}{b \cos i_1 \sin 2\xi}. & (b) & \end{array}$$

Par ailleurs, l'étude de la figure 4 ainsi que celle des relations (12) nous montrent que la lumière diffractée n'existe pas en dehors d'un cône ; les angles i_2 et ψ_2 ne peuvent donc varier qu'entre deux valeurs limites. Ainsi :

$$|i_1| < |i_2| < \left|\frac{\pi}{2}\right|$$

$$i_1 < |\psi_2| < \frac{\pi}{2}.$$

Il en résulte évidemment que toutes les longueurs d'onde ne peuvent coexister dans un ordre donné. La longueur d'onde maximum $(\lambda_M)_\perp$ dans l'ordre k, sera celle donnée par la relation (11, b) quand $i_2 = \pi/2$ et $\psi_2 = i_1$, ce qui correspond à l'observation dans le plan du réseau. Donc

$$\begin{array}{lll} (\lambda_M)_\perp = \dfrac{b \cos i_1}{k} & (a) & \\ & & (14) \\ (\nu_M)_\perp = \dfrac{k}{b \cos i_1}. & (b) & \end{array}$$

Nous constatons donc que lorsque le plan d'incidence est perpendiculaire au plan de section principale, le domaine des longueurs d'onde passant dans un ordre est plus étendu que lorsque le plan d'incidence est parallèle au plan de section principale. D'autre part, l'existence d'une longueur d'onde « seuil » (λ_M) fait qu'un domaine important se trouve uniquement concentré dans l'ordre zéro. Cette « longueur d'onde seuil » se trouvant relativement assez proche de la longueur d'onde réfléchie dans le « blaze » pour l'ordre 1.

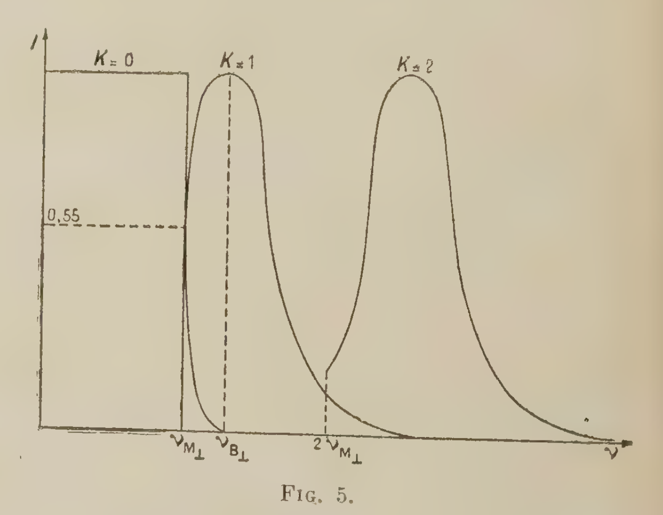


Fig. 5.

Nous avons présenté (*fig.* 5), la répartition de l'énergie suivant la longueur d'onde dans les différents ordres en ne tenant compte que du premier maximum et en admettant que ce qui n'est pas dans l'ordre 1 se trouve dans l'ordre zéro.

c) Étude expérimentale des propriétés précédentes. — Nous avons pu vérifier les propriétés

précédentes à l'aide d'un spectrographe conçu pour la région de 150 μ à 300 μ. Dans cet appareil, en plus des filtres classiques destinés à éliminer les plus courtes longueurs d'onde [3], nous utilisons dans l'ordre zéro un réseau Echelette de forme carrée. Les caractéristiques d'utilisation de ce réseau étaient telles que

$$\xi = 26^\circ \qquad i_1 = 45^\circ.$$

soit

$$\sin \xi = 0{,}438 \qquad \sin 2\xi = 0{,}788$$
$$\sin i_1 = 0{,}707 \qquad \cos i_1 = 0{,}707$$
$$\cos (i_1 - \xi) = 0{,}945.$$

Dans ces conditions, l'application numérique des relations précédentes donne :

$$\begin{cases} (\lambda_B)_{//} = \dfrac{0{,}828\, b}{k} \\ (\nu_B)_{//} = \dfrac{k}{0{,}828\, b} \end{cases}$$

$$\begin{cases} (\lambda_M)_{//} = \dfrac{1{,}707\, b}{k} \\ (\nu_M)_{//} = \dfrac{k}{1{,}707\, b} \end{cases}$$

$$\begin{cases} (\lambda_B)_\perp = \dfrac{0{,}547\, b}{k} \\ (\nu_B)_\perp = \dfrac{k}{0{,}547\, b} \end{cases}$$

$$\begin{cases} (\lambda_M)_\perp = \dfrac{0{,}707\, b}{k} \\ (\nu_M)_\perp = \dfrac{k}{0{,}707\, b}. \end{cases}$$

Nous avons représenté (*fig.* 6, 7, 8) sur les mêmes graphiques la variation du facteur de transmission en fonction de la longueur d'onde dans les premiers ordres pour la position parallèle, en trait fort, et la position perpendiculaire en trait fin pour trois réseaux différant seulement par le paramètre b. On voit de façon évidente que le domaine rassemblé dans l'ordre zéro s'étend beaucoup plus vers les grandes fréquences lorsque les plans d'incidence et de section principale sont perpendiculaires. Les spectres obtenus avec notre spectromètre, en remplaçant successivement un miroir plan par chacun de ces trois réseaux dans les deux positions possibles vérifient cette conclusion et permettent, avec une certaine précision, la détermination expérimentale de la fréquence de coupure. Les résultats sont assez satisfaisants. Jusqu'à présent, les expériences n'ont pu être réalisées qu'en lumière convergente et les angles utilisés dans nos calculs concernent les rayons incident et diffracté au centre du réseau filtre et passant respectivement par les milieux de la fente d'entrée et de la fente de sortie. Une véri-

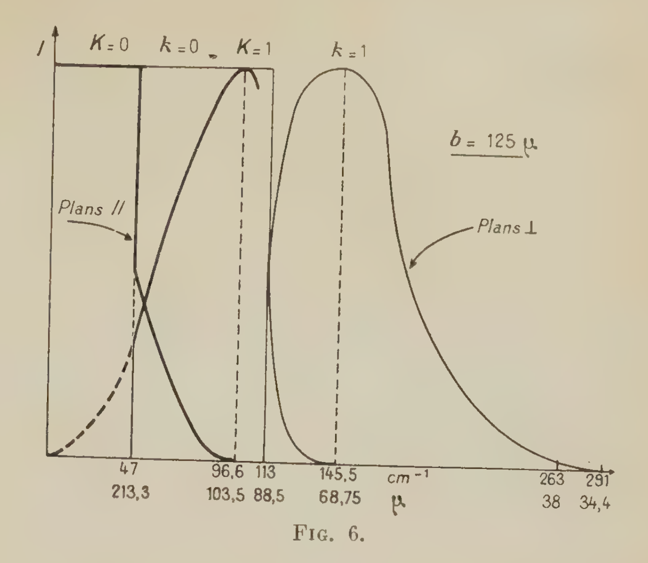


Fig. 6.

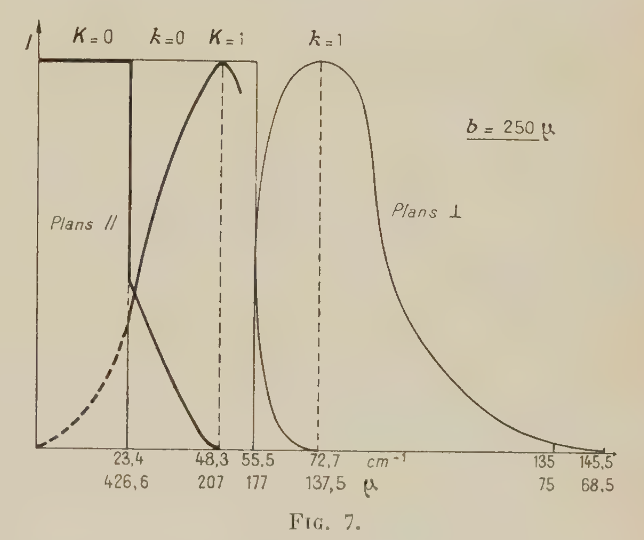


Fig. 7.

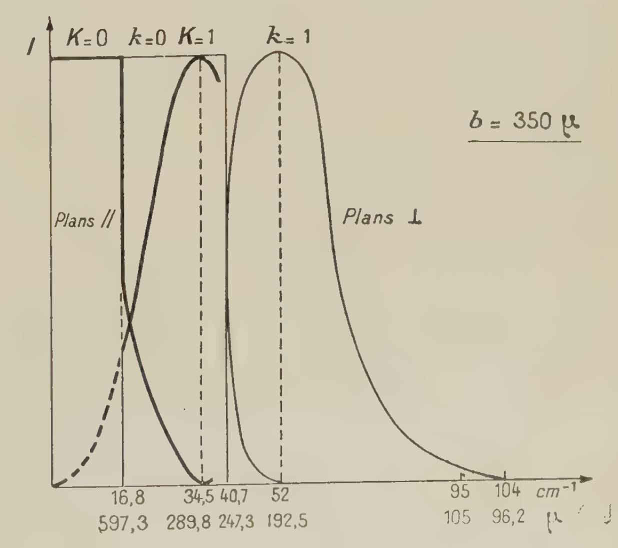


Fig. 8.

fication précise sera faite prochainement en lumière parallèle.

II. Répartitions des différents ordres dans l'espace. Vérification expérimentale. — Nous avons vu que les directions d'intensité maximum nous étaient données par les relations :

$$\begin{cases} b\,(\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2) = k\,\lambda \\ \cos \beta_1 + \cos \beta_2 = 0 \end{cases}$$

ou

$$\begin{cases} b\,(\sin i_1 \cos \psi_1 + \sin i_2 \cos \psi_2) = k\,\lambda \\ \sin i_1 \sin \psi_1 + \sin i_2 \sin \psi_2 = 0. \end{cases}$$

Lorsque le réseau est utilisé comme filtre, on l'oriente de façon que le rayon moyen diffracté dans l'ordre zéro ($i_1 = - i_1$), tombe au centre de la fente de sortie. Celle-ci forme un rectangle dont les deux dimensions sont du même ordre de grandeur et assez importantes pour que des rayons diffractés par le filtre dans des directions s'écartant du rayon moyen de $\pm\, di = 10°$ puissent arriver sur la fente de sortie. Dans le cas où les plans d'incidence et de section principale sont parallèles, les relations précédentes se réduisent à :

$$b\,(\sin i_1 + \sin i_2) = k\,\lambda.$$

Le premier membre n'est plus nul si l'on prend $i_2 = - i_1 + di$; il arrive donc sur la fente de sortie des radiations d'ordre $k \neq 0$. La plus grande longueur d'onde de chaque ordre qui tombera sur le récepteur sera telle que :

$$k(\lambda_{M'})_{//} = b\,[\sin i_1 - \sin (i_1 + \Delta i)]$$

avec nos conventions de signe et si l'angle au sommet du cône tolérable est égal à $2\Delta i$.

Soit, en assimilant $\sin \Delta i$ à Δi et $\cos \Delta i$ à 1 :

$$\boxed{(\lambda_{M'})_{//} = \frac{b \cos i\, \Delta i}{k}.}$$

C'est-à-dire qu'en plus des longueurs d'onde comprises dans l'ordre zéro, il tombera sur le récepteur les longueurs d'onde inférieures à $b \cos i\, \Delta i$.

Dans le cas où les plans d'incidence et de section principale sont perpendiculaires, les relations précédentes s'écrivent :

$$\begin{cases} b \sin i_2 \cos \psi_2 = k\,\lambda \\ \sin i_1 + \sin i_2 \sin \psi_2 = 0. \end{cases}$$

Avec les mêmes notations que précédemment, la plus grande longueur d'onde, étrangère à l'ordre zéro, qui tombera sur le récepteur sera telle que :

$$\begin{cases} b\,[\sin i_1 + \Delta i \cos i_1] \cos \psi_2 = k\,\lambda \\ \sin i_1 = (\sin i_1 + \Delta i \cos i) \sin \psi_2 \end{cases}$$

ou

$$\begin{cases} (\lambda_M)_\perp = \dfrac{b\,[\sin i_1 + \Delta i \cos i_1] \cos \psi_2}{k} \\[2ex] 1 = \dfrac{\sin i_1 + \Delta i \cos i_1}{\sin i_1} \sin \psi_2. \end{cases}$$

De la dernière relation, nous allons tirer ψ_2 pour le porter dans l'expression de $(\lambda_M)_\perp$

$$\sin^2 \psi_2 + \cos^2 \psi_2 = \left(\frac{\sin i_1 + \Delta i \cos i}{\sin i_1}\right) \sin^2 \psi_2$$

soit

$$\cos \psi_2 = \frac{\sqrt{\Delta i \sin 2i}}{\sin i_1 + \Delta i \cos i}.$$

Donc

$$\boxed{(\lambda_{M'})_{//} = \frac{b\,\sqrt{\Delta i \sin 2i}}{k}.}$$

Dans le cas de notre étude expérimentale, nous avons $i = 45°$ et $\Delta i = 5° = 0{,}087$ radian.

Les expressions précédentes prennent donc dans ce cas les valeurs numériques :

$$\boxed{\begin{aligned} (\lambda_{M'})_{//} &= 0{,}0615\, b \\ (\lambda_{M'})_\perp &= 0{,}3\, b. \end{aligned}}$$

Nous avons consigné dans le tableau ci-dessous les valeurs de $(\lambda_{M'})_{//}$ et de $(\lambda_{M'})_\perp$ pour les différents réseaux étudiés et en prenant $k = 1$ pour avoir les plus grandes longueurs d'onde, celles qu'il serait le plus difficile d'éliminer :

b μ	$(\lambda_{M'})_{//}$	$(\lambda_{M'})_\perp$
125	8	38
250	15	75
350	21	105

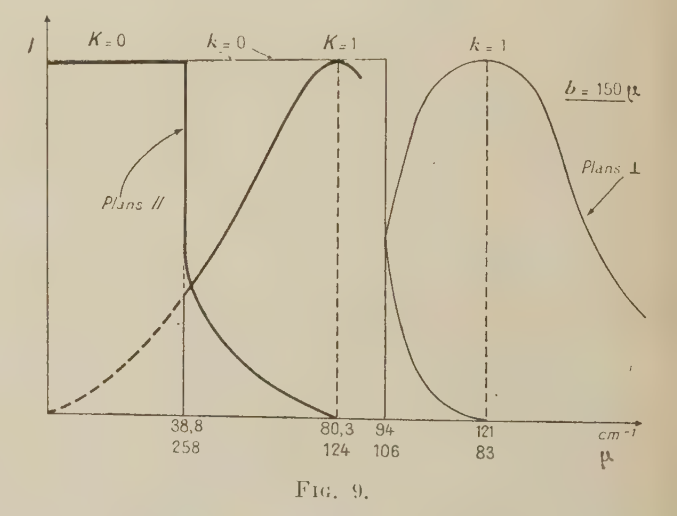


Fig. 9.

Nous constatons sur les courbes des figures 6, 7, 8 et 9 que ces radiations sont mal transmises dans l'ordre $k = 1$. De plus, leurs longueurs d'onde étant très inférieures à celles qu'on utilise il devrait être facile de les éliminer à l'aide de différents filtres placés en permanence dans le spectromètre. Cette

conclusion a pu être vérifiée avec précision en mesurant l'énergie parasite de longueurs d'onde inférieures à 30 μ avec un écran de KBr. Elle est nulle, à 1 % près (précision des mesures) dans tous les spectres réalisés avec une lampe à vapeur de mercure entre 150 et 330 μ lorsqu'on utilise 2 réseaux filtres, l'un à traits horizontaux distants de $b = 250$ μ, l'autre à traits verticaux distants de $b = 125$ μ.

Par contre, il n'est plus possible d'éliminer complètement la lumière parasite si l'on remplace cette lampe par une source thermique (Globar) qui émet surtout dans l'infrarouge proche et c'est cette expérience qui nous a conduit à reprendre l'étude des réseaux Echelette dans le cas le plus général.

En résumé, il se confirme que les réseaux Echelette peuvent constituer des filtres passe-bas exceptionnels. La théorie fait prévoir un facteur de transmission de 100 % dans une zone de basse fréquence dont on peut choisir la largeur. *L'expérience confirme parfaitement ce facteur de transmission remarquable.* De plus, la transmission baisse très rapidement à partir de la longueur d'onde de coupure. En choisissant convenablement les paramètres du réseau et les conditions d'utilisation (traits horizontaux ou verticaux), on doit pouvoir améliorer considérablement leur efficacité dans chaque cas particulier. Nous projetons l'étude expérimentale de ces filtres en lumière parallèle en vue de vérifier avec plus de précision les propriétés trouvées et aussi d'étudier des effets possibles de polarisation de la lumière par les réseaux Echelette décrits par plusieurs auteurs [3-4] mais dont la vérification expérimentale n'a pas encore été établie à notre connaissance de façon satisfaisante.

Manuscrit reçu le 2 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] De Malleman (R.), Optique Physique, Diffraction, cours de l'Université de Nancy (C. D. U.). Bouasse, Interférences ; Diffraction (Delagrave).

[2] Hadni (A.), *Revue d'Optique*, 1954, **33**, 57 ; *Nuovo Cimento*, 1955, **2**, 703. Jacquinot (P.), Communication à la Société de Physique, novembre 1955. Lecomte (J.), *Handbuch der Physik*, Band XXIV, p. 283.

[3] Hadni (A.) et Decamps (E.), Communication au 7e Colloque International de Spectroscopie Moléculaire, Liège, 1958.

[4] Reiche (Fritz), *Drude Annalen*, IV, 1912, **37**, 131. Pogany (Bela), *Drude Annalen*, IV, 1912, **34**, 131. Peters (C. W.), Zipf (T. F.) et Deibel (P. V.), *J. O. S. A.*, 1953, **43**, 816. Liang (C. Y.), Krimm (S.) et Sutherland (G. B. B. M.), *J. Chem. Phys.*, 1956, **25**, 543, 571. Hadni (A.), Decamps (E.) et Delorme (P.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 793. Rohrbaugh (J. H.), Pine (C.), Zoellner (W. G.) et Hatcher (R. D.), *J. Opt. Soc. Amer.*, 1958, **48**, 710.

EXPOSÉ ET MISE AU POINT BIBLIOGRAPHIQUE

PRÉSENCE DES DISLOCATIONS DANS LES CRISTAUX

Par ADRIENNE R. WEILL,

Résumé. — Jusque vers 1949, on pouvait encore se poser la question de la valeur concrète de la théorie des dislocations, parce que l'expérience n'était pas capable de mettre en évidence ces types de défaut du réseau. En dix ans l'expérience a rattrapé et même devancé les prévisions théoriques, ainsi que le montrent les récents articles dont il est fait état dans la bibliographie ici présentée.

Abstract. — Until 1949, the pratical value of the dislocation theory was still questionable as no experiment had been able to give evidence of this type of lattice defect. Within ten years experiments have been performed which not only check the theoretical predictions but extend them much further. This is demonstrated in the recent papers listed in the bibliography presented here.

Introduction. — Pour interpréter les phénomènes macroscopiques accompagnant la déformation et la rupture des métaux — et celle des cristaux ioniques — les physiciens eurent l'idée de chercher à définir les types de défauts du réseau cristallin qui, à l'échelle des distances interatomiques, pouvaient avoir une influence sur les propriétés mécaniques de l'édifice.

Des ouvrages comme ceux de Read [1] (1953), Cottrell (1953) et J. Friedel (1956), ou de brefs exposés comme ceux de François et Gaspart (1958), traitent de la théorie, sur laquelle nous n'insisterons pas ici.

Notre dessein est de confronter les illustrations les plus caractéristiques avec les schémas fondamentaux, en insistant particulièrement sur ceux à partir desquels la théorie s'est développée.

I. **Dislocation-coin.** — Le concept d'un défaut dont la géométrie correspond à l'*insertion d'un plan cristallin* dans un réseau par ailleurs parfaitement régulier a été introduit indépendamment par Orowan (1934), Polanyi (1934) et Taylor (1934).

L'illustration directe en a été donnée pour la première fois par Menter (1956) qui l'a fait apparaître au microscope électronique en observant par transmission les « moirés » produits par la superposition de couches minces de phtalocyanate de cuivre ou de platine.

Ces expériences ont été reprises par Mme Espagne (1958), tandis que Menter et ses collaborateurs (1957), (1958) poursuivaient leurs recherches sur des oxydes et des métaux sublimés. Ils ont ainsi atteint pour les plans $(42\bar{2})$ du nickel (espacement réticulaire $d = 0{,}72$ Å) déposé sur l'or la résolution de 5,8 Å, ce qui correspond à un agrandissement de 7,4 grâce à l'effet du moiré.

Dès 1939, Burgers avait étudié un arrangement simple de telles dislocations formant un sous-joint dans un monocristal.

[1] Les références bibliographiques sont données à la fin de l'article par ordre alphabétique.

La première confirmation expérimentale de ce *joint de flexion*, avec signalement des dislocations individuelles qui le forment, est due à Vogel et co-auteurs (1953) examinant au microscope optique un monocristal de germanium convenablement attaqué par voie chimique, et vérifiant la désorientation calculée par diffraction de rayons X.

Cette expérience a donné toute leur valeur aux travaux antérieurs sur la *polygonisation* des métaux, attribuée par Crusard (1944 et 1945) à un réseau de tels joints, idée confirmée par les travaux de l'école du professeur Chaudron au microscope (Lacombe et Beaujard, 1947, etc...) et des diagrammes de rayons X (Cahn, 1947) révélant le morcellement des grains en cristallites.

Intéressée au premier chef, l'industrie des semiconducteurs a recherché la correspondance univoque entre piqûre d'attaque chimique et émergence de dislocations dans les cas suivants : germanium (Vogel, 1955), silicium (Lovell et Vogel, 1956), antimoine (Dorsi et co-auteurs, 1958), indium-antimoine (Broudy et Venables, 1958), qui distinguent même le signe des dislocations (Broudy et Venables, 1959), tandis que le nickel-manganèse était étudié par Taoka et Sakata (1957). Pour les autres métaux, signalons les recherches sur l'aluminium (Lacombe et Wyon, 1954 et Wyon, 1958), l'argent (Hirth et Vassamillet, 1958), le bismuth (Lovell et Wernick, 1959), le fer massif (Boswell, 1957) ou en filament ténu (whisker), (Coleman, 1958), le niobium (Huegel et Michael, 1957), le tellure (Lovell et co-auteurs, 1958), le tungstène (Wolff, 1958) et le zinc (Gilman, 1956). Parmi les travaux sur les halogénures, après ceux d'Amelinckx (1954), où d'autres types de dislocation et de joint font leur apparition, nous n'indiquerons que les plus récents dus à Moran (1958), tandis que, parmi les autres cristaux ioniques, l'apatite est étudiée par Lovell (1958) et la calcite par Watts (1959).

Comme le joint de flexion, le glissement pouvait être interprété à partir des dislocations, cette fois-ci en mouvement (Frank, 1947), et il en devait résulter des

empilements (Eshelby, Frank et Nabarro, 1951). Jacquet (1954) les a révélés dans le laiton α, comme l'ont prouvé, par le calcul, Bilby et Entwistle (1956). Au microscope électronique par transmission, sur échantillons amincis, le même arrangement apparaît dans l'acier inoxydable à une échelle 10 fois plus fine (Bollmann, 1956).

II. **Dislocation-vis.** — Burgers (1939, 1940) imagine une ligne de dislocation se propageant non plus perpendiculairement à elle-même, mais suivant sa propre direction.

Frank (1949) a eu l'idée d'introduire ce type de défaut comme moteur d'un mode de croissance cristalline. Avant même que le traitement théorique complet n'ait été publié (Frank, Burton et Cabrera, 1951), la preuve expérimentale en avait été fournie (Griffin, 1950).

Si nombreux furent les résultats obtenus dans ce domaine au cours des années suivantes que deux ouvrages y furent consacrés (Verma, 1954) (Dekeyser et Amelinckx, 1955) donnant en particulier toutes les mesures effectuées sur les spirales de croissance du carbure de silicium.

Cette toute première preuve directe de la présence de dislocations à l'échelle du réseau et de son influence sur des phénomènes macroscopiques (certaines spirales sont visibles à l'œil nu) parut incontestable aux uns, douteuse à certains. Dix ans après, il est hors de doute que les premiers avaient bien jugé, il est même possible de chercher à démêler des cas complexes, encore imparfaitement interprétés (Weill, 1949), ou de trouver dans les dispositions dendritiques des arrangements qui indiqueraient une des origines possibles des dislocations du réseau (Forty et Gibson, 1958).

Cette figure de croissance peut-elle apparaître sous son aspect réciproque par attaque chimique ? Gevers a tenté de le démontrer sur le carbure de silicium (1952, 1953) et Amelinckx (1954) sur le sel gemme, Omar et Kenawi sur le diamant (1956), guidés par le Pr Tolansky (Holloway College, Londres).

Les résultats les plus probants furent obtenus sur des *figures d'évaporation* (Votava, 1956) produites sur des clivages de sel gemme, en même temps qu'apparaissaient des hachures, révélant la formation de *joints de torsion* par réseau de dislocation-vis. Ces hachures avaient été observées par Zapffe et Worden (1949) sur le phosphate diacide d'ammonium notamment, mais n'avaient pas reçu d'interprétation à l'époque. Watts (1958) les retrouve sur la calcite.

La figure d'évaporation est, comme celle d'attaque, un moyen d'étude des défauts des métaux : Suzuki (1956) l'applique à l'argent et au ferro-silicium, Danko et Griest (1956) au nickel, au cuivre et au zinc, Votava et co-auteurs (1957) au cuivre.

Ainsi parmi les travaux déjà cités pour révéler les dislocations, sans distinction de type, il s'en trouve où les deux modes ne sont pas nettement différenciés, tandis que, les méthodes d'attaque s'affinant par la pratique, les dislocations-vis vont être reconnaissables aux spirales qu'elles produisent dans des conditions très critiques. Il en va ainsi pour l'antimoine (Dorsi et co-auteurs, 1958), le cuivre (Bassi et Fourie, 1947), le germanium (Pfann et Vogel, 1957) et le silicium (Bardsley et Strangham, 1957).

Les alliages sont étudiés de même manière, tel l'aluminium-cuivre-zinc par Buinov et Tchegoleva (1957), ou le ferro-silicium par Kroupa (1958) qui tente de trouver les lois physico-chimiques correspondant à la formation des spirales d'attaque.

Au sujet des cristaux ioniques, après les auteurs déjà cités (Amelinckx, 1954), signalons l'étude du sulfure de cadmium où Reynolds et Greene (1958) ont réussi à faire apparaître les spirales en terrasse et en cuvette.

Par bombardement ionique, seules les dislocations en hélice sont révélées (Meckel et Swalin, 1959), tandis que le microscope électronique à émission de champ appliqué à l'étude des dislocations du tungstène par Drechsler (1956), à celles du palladium par Caspary et Krautz (1958) ne détecte que les dislocations-coin.

La distinction entre les deux types de dislocation, coin et vis, a été mise en évidence de manière saisissante par Gilman et Johnston (1956 *a*) sur les clivages de fluorure de lithium. Ils ont su tirer un parti considérable de cette circonstance, montrant entre autre le mécanisme des glissements révélé par le déplacement des dislocations (1956 *b*), (avec Sears, 1958 *a*) (1958 *b*), enfin allant jusqu'à mesurer la vitesse avec laquelle la dislocation se meut suivant les charges appliquées pour provoquer la déformation du cristal (1959).

III. **Géométrie des dislocations.** — Chaque fois qu'une méthode physique permet d'obtenir un contraste localisé aux défauts du réseau cristallin, l'observation n'est plus limitée en surface, mais porte sur des épaisseurs de matière variables suivant qu'il s'agit de radiations lumineuses ou infra-rouges, de rayons X ou de faisceaux électroniques.

En lumière visible, l'observation des défauts dans les corps transparents n'est possible que si une impureté opaque diffuse ou précipite dans les canaux que constituent les lignes de dislocation.

Cette méthode de « décoration » inaugurée par Hedges et Mitchell en 1953 par précipitation de l'ion argent dans le bromure d'argent, s'est montrée d'une fécondité extraordinaire tant pour ces mêmes cristaux (Mitchell, 1956), (Barber, Harvey et Mitchell, 1957) que pour d'autres sels et composés ioniques comme le chlorure de sodium (Amelinckx et co-auteurs, 1955), (Amelinckx, 1956 *a* et *b*) ou de potassium (Amelinckx et co-auteurs, 1956 *c*), (Amelinckx, 1958 *a*), la fluorine (Amelinckx et Bontinck, 1957), le bromure de césium (Amelinckx, 1958 *b*).

Parmi les dispositions les plus remarquables ainsi révélées, notons plusieurs modes d'arrangements de dislocations dans les parois de polygonisation, en particulier les réseaux hexagonaux dont Frank (1954) avait calculé les conditions d'équilibre à partir des observations micrographiques de Suzuki et Imura (1954).

Au microscope électronique par transmission, l'absence de matière qui caractérise les lignes de dislocation peut suffire à produire un contraste de l'image. On observe alors dans l'aluminium polygonisé les types déjà entrevus de parois de sous-joints (Hirsch, Horne et Whelan, 1956 *a* et *b*).

Dans une bande d'infra-rouge bien définie, le silicium est transparent, le cuivre est opaque. Dash (1956 *a* et *b*) après avoir diffusé du cuivre dans une plaquette monocristalline de silicium observe également les parois de polygonisation entre autres dispositions.

Lang (1958) reproduit la même image aux rayons X

et obtient des topographies de cristaux par des méthodes fines de micrographies aux rayons X. Indépendemment, Newkirk (1958) étudie avec un montage différent le ferro-silicium, le fluorure de lithium, entre autres.

Au cours de ces recherches des phénomènes ont été observés qui tantôt avaient été prévus et exploités par la théorie, tantôt envisagés sans qu'il fût possible de préciser le détail des configurations les plus probables. Nous donnerons un exemple type correspondant à chacun de ces deux cas.

IV. **Moulin à dislocations.** — Après avoir démontré la nécessité, pour expliquer le mécanisme du glissement, de recourir à un processus multiplicateur de dislocations (Frank, 1947), l'un des modes théoriquement plausible fut proposé en 1950 par Frank et Read et nommé moulin à dislocations.

Dash (1956 *a* et *b*) en a donné les illustrations les plus parfaites en déformant légèrement le silicium décoré de cuivre. Ses photographies au microscope dans l'infrarouge sont assez détaillées pour permettre la distinction entre dislocations des deux types.

Jacquet et co-auteurs (1958) ont retrouvé les mêmes sources multiplicatrices dans l'aluminium-cuivre à 4 % de cuivre, d'abord en observant les surfaces au microscope optique, puis sur des empreintes reprises au microscope électronique (Jacquet et Mercarelli, 1959).

Jusque là seules des branches incomplètes ou des figures similaires avaient été prises comme preuves de l'existence de ce processus (voir par exemple Amelinckx et co-auteurs, 1956 *c*, Servi, 1958), mais les théoriciens en avaient fait grand cas étant donné l'importance pour leurs traitements de l'existence réelle de ce mécanisme fondamental (Mott, 1956).

V. **Formation d'hélices et de boucles.** — Seitz (1952) en postulant l'existence de dislocations prismatiques avait envisagé des arrangements voisins des hélices découvertes par Amelinckx (1956 *c*) dans la fluorine.

De même que la polygonisation se manifeste parfois à l'échelle macroscopique, comme l'a remarqué Roth (1954) à propos du sulfure de zinc, l'hélice est l'une des formes de croissance des barbes de l'étain (Sines, 1956), et ce dernier cas montre bien que la disposition des lacunes dans la matière peut être identique à celle de la matière elle-même isolée dans l'air.

Dash (1958) retrouve ces mêmes hélices, accompagnées des lignes de dislocation qui leur donnent naissance dans le silicium-cuivre, tandis que Tweet (1958) réussit à en observer une coupe longitudinale dans le germanium faiblement additionné de lithium.

A une échelle beaucoup plus fine, aux forts grossissements du microscope électronique, Thomas et Whelan (1958) observent des précipités de même morphologie dans l'aluminium-cuivre à 4 % de cuivre (2).

VI. **Origines des dislocations.** — La question de l'origine des dislocations n'a été abordée que par le raisonnement (Frank, 1950), tant que l'expérience n'atteignait pas le réseau cristallin dans ses configurations intimes.

(2) Les photographies de Jacquet et Mencarelli (1959) sont prises à des grossissements dix fois plus faibles, environ 5 000 au lieu de 50 000, néanmoins on discerne semble-t-il des hélices représentant les précipités.

Grâce au microscope électronique par transmission, des arrangements de lacunes dans l'aluminium pur aminci à l'extrême ont été décelées (Hirsch et co-auteurs, 1958). Des boucles apparaissent, organisées suivant les directions cristallines, et ces rassemblements de lacunes pourraient être à l'origine des dislocations.

Smallman (1958) reprend des études analogues sur le cuivre, l'or, le nickel, l'argent, retrouve tantôt des boucles, tantôt des défauts d'empilement, déjà observés sur l'acier inoxydable (Hirsch, Bollmann et co-auteurs, 1957), tantôt d'autres formes géométriques.

VII. **Mouvements des dislocations.** — Grâce au microscope électronique à foyer réglable, le mouvement des dislocations qui se produit pour un certain échauffement de l'échantillon fortement aminci par l'impact électronique, a pu être cinématographié (Hirsch et co-auteurs, 1956, 1957).

Les films sur l'aluminium et l'acier inoxydable ont puissamment contribué à l'intelligence des phénomènes d'interaction entre dislocations, que le modèle analogique en bulles de savon de Sir Lawrence Bragg (également filmé) avait tenté de mettre en évidence. En fait théorie et modèle se sont trouvés amplement confirmés par l'illustration directe, et même prolongées les conséquences prévues.

D'autres films sont en préparation, ou déjà exécutés (Grenall, 1958) en même temps que se perfectionnent les méthodes d'amincissement des métaux et alliages soit par électrolyse (Jacquet, 1956), soit par bombardement ionique (Castaing et Laborie, 1953), soit par oxydation.

C'est ce dernier mode que préconise Saulnier (1958) pour l'uranium, tandis que Mme Tomlinson (1958) amincit par électrolyse le cuivre, le nickel, le laiton α, le magnésium, le cobalt et le fer. Le bombardement ionique est utilisé pour le beryllium (Baird et co-auteurs, 1958), et les alliages légers (AZ9 G1 et AZ7 G3) par Genty et co-auteurs (1958 *a* et *b*).

Ces travaux exigent un approfondissement des connaissances au sujet des phénomènes thermiques qui se produisent dans le microscope électronique, lorsque varie la dimension du foyer, pour être exploités utilement. C'est ce que remarquent, entre autres, Berghezan et Fourdeux (1958). Déjà on a pu observer la fusion et la recristallisation du nickel (Bollmann, 1959) ou du fer (Hale et Thomas, 1958) et même la formation spontanée de moirés dans le fer, comme dans l'aluminium (Robinson, 1958), enfin reprendre la question de l'ordre à longue distance dans les alliages par l'observation des domaines antiphases (Ogawa, Watanabe et co-auteurs, 1958, Glossop et Pashley, 1959).

VIII. **Phénomènes optiques et dislocations.** — Deux ordres de phénomènes tout à fait différents méritent d'être signalés.

Les biréfringences optiques introduites par les tensions de trempe dans des cristaux comme le chlorure de sodium et le fluorure de lithium correspondent, d'après Kear et Pratt (1958) aux bandes formées par les rangées de dislocation, comme dans le cas du silicium observé dans l'infra-rouge (Bond et Andrus, 1956).

L'émission de lumière par claquage dans les semi-conducteurs se produit préférentiellement, selon Pearson et Read (1954), aux points d'émergence des dislocations, ce que Chynoveth et Pearson ont réussi à

mettre en évidence (1958), tandis que les défauts du réseau interviennent également pour modifier les émissions par recombinaison électrons-trous, selon Benoît à la Guillaume (1958).

Conclusion. — Les exemples retenus pour figurer dans cet exposé bibliographique montrent que les processus essentiels conçus pour interpréter les phénomènes de déformation et de fracture des métaux ont été confirmés dès que les techniques d'observation ont permis d'atteindre directement — ou par l'intermédiaire d'un mécanisme physique — les dislocations du réseau.

Il semble qu'ayant rejoint la théorie sur un très grand nombre de points essentiels, depuis 1956 surtout, l'expérience se situe aujourd'hui en avant-garde, ou tout au moins permette d'élargir le champ d'application des prévisions que la prudence des physiciens les avait incité à restreindre.

Déjà la théorie de la croissance cristalline n'avait été prévue que pour les cristaux monoatomiques croissant à partir de la phase vapeur. D'emblée elle se trouva vérifiée pour un cristal ionique croissant aux dépens d'une solution.

Tel processus, comme le moulin à dislocations, envisagé à l'échelle des espacements interatomiques dans un réseau cubique simple, a été saisi en action dans le silicium (structure cubique, type diamant) à l'échelle microscopique, ce qui en affirme l'importance du point de vue des applications pratiques.

Notre mode d'exposition nous a imposé de restreindre le nombre des expériences présentées, en nous limitant en principe aux premières publications théoriques et aux plus récentes illustrations expérimentales, où sont rappelés les travaux de la période intermédiaire. Ce faisant nous commettons des injustices au détriment de tous ceux qui ont contribué et à l'édification de la théorie et à l'élaboration des méthodes expérimentales, et nous nous en excusons auprès d'eux.

Manuscrit reçu le 24 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

AMELINCKX (S.), *Acta Metallurgica*, 1954, **2**, 848.

AMELINCKX (S.) et DEKEYSER (W.), 1955. Voir DEKEYSER (W.)

AMELINCKX (S.), VAN DER VORST (W.), GEVERS (R.) et DEKEYSER (W.), *Phil. Mag.* (G.-B.), 1955, (7), **46**, 450.

AMELINCKX (S.), *Phil. Mag.*, 1956 *a* (8), **1**, 269. D. M. P. C. (*), 3, 1956 *b* (avec MAENHOUT-VAN DER VORST), 1956 *c*, DMPC, 55.

AMELINCKX (S.) et BONTINCK (W.), *Phil. Mag.*, 1957 *a* (8), **2**, 94 (avec DEKEYSER (W.) et SEITZ (F.)), *Phil. Mag.*, 1957 *b*, 355.

AMELINCKX (S.), *Acta Metallurgica*, 1958 *a*, **6**, 34 ; *Phil. Mag.*, 1958 *b* (8), **3**, 307. *Phil. Mag.*, 1958 *c*, 653. *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958 *d*, **29**, 1610.

ANDRUS (J.) et BOND (W. L.), voir BOND (W. L.).

BAIRD (J. D.), HARTREE (O. P.) et PHILLIPS (R.), *Nature*, 1958, **182**, 1660.

BARBER (D. J.), HARVEY (K. B.) et MITCHELL (J. W.), *Phil. Mag.*, 1957 (8), **2**, 704.

BARDSLEY (W.) et STRANGHAM (B. W.), *J. Electronics*, 1956, I, 561.

BASSI (G.) et FOURIE (J. T.), *Acta Met.*, 1957, **5**, 678.

BENOIT A LA GUILLAUME, *Thèse*, Paris, 1958.

BERGHEZAN (A.) et FOURDEUX (A.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1958, **247**, 1194.

BIBBY (B. A.) et ENTWISTLE (A. R.), *Acta Met.*, 1956, **4**,257.

BOLLMANN (W.), *Phys. Rev.*, 1956 *a*, **103**, 1588 ; Proc. Stockholm Conf. on Electron Microscopy, 1956 *b*, 317. Communication privée, 1959.

BOND (W. L.) et ANDRUS (J.), *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 1211.

BOSWELL (F. W. C.), *Metal Progress*, 1957, **73**, 93.

BROUDY (R. M.) et VENABLES (J. D.), *J. Appl. Phys.* (U. S. A.), 1958, **29**, 1025 et *J. Appl. Phys.* (U. S. A.), 1959, **30**, 122.

BUINOV (N. N.) et TCHEGOLAVA (T. V.), *Fiz. Met. i Metallovednia*, 1957, **5**, 566.

BURGERS (J. M.), *Proc. Kon. Ned. Akad. Wet.*, 1939, **42**, (*a*) 293 et (*b*) 378 ; Internal Strains in Solids, Conférence de la Physical Society (Bristol), 1940, 23.

(*) D. M. P. C. abréviation de : Dislocations and Mechanical Properties of Crystals. Conférence Internationale tenue à Lake Placid (U. S. A.) en septembre 1956. Éd. J. Wiley et Cie, New-York, 1957.

BURTON (W. K.), CABRERA (N.) et FRANK (F. C.), 1951, voir FRANK (F. C.).

CAHN (R. W.), Strength of Solids, Conférence de la Physical Society (Bristol), 1947, 136.

CASPARY (E. K.) et KRAUTZ (E.), *Z. Metallkunde*, 1958, **49**, 147.

CASTAING (R.) et LABORIE (P.), *C. R. Acad. Sc.* (Paris), 1953, **237**, 1330.

CHYNOVETH (A. G.) et PEARSON (G. L.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958, **29**, 1103.

COLEMAN (R. V.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958, **29**, 1487.

COTTRELL (A. H.), Dislocations and Plastic Flow, Clarendon Press, Oxford (G.-B.), 1953.

CRUSSARD (C.), *Revue de Métallurgie*, 1944, **41**, 118, 139. ; *Revue de Métallurgie*, 1945, **42**, 286, 311.

DANKO (J. C.) et GRIEST (A. J.), *J. of Metals* (U. S. A.). Trans. AIME, 1956, **8**, 515.

DASH (W. C.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1956 *a*, **27**, 1193 ; DMPC, 1956 *b*, 57 ; *Phys. Rev. Letters*, 1958, **1**, 400.

DEKEYSER (W.) et AMELINCKX (S.), Les dislocations et la croissance des cristaux, Masson, Paris, 1955.

DORSI (D.), HOBSTETTER (J. N.) LOVELL (L. C.) et WERNICK (J. H.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958, **29**, 1013.

DRECHSLER (M.), *Z. Metall.*, 1956, **47**, 305.

ESHELBY (J. D.), FRANK (F. C.) et NABARRO (F. R. N.), *Phil. Mag.*, 1951 (7), **42**, 351.

ESPAGNE (H.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1958, **247**, 922.

FORTY (A. J.) et GIBSON (J. G.), *Acta Met.*, 1958, **6**, 137.

FRANÇOIS (M.), *Revue M. B. L. E.*, Bruxelles, 1958 (*a*), I (2), 1re partie (avec GASPART (R.)), *Revue M. B. L. E.*, Bruxelles, 1958 (*b*), I (2), 2e partie.

FRANK (F. C.), Strength of Solids, Conférence de la Physical Society, Bristol, 1947, 46.

FRANK (F. C.), *Trans. Farad. Soc.*, 1949, **5**, 48.

FRANK (F. C.) et READ (W. T.), *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 722.

FRANK (F. C.), Plastic Deformation of Crystalline Solids, Conférence tenue à Pittsburgh (U. S. A.), 1950, 89.

FRANK (F. C.), BURTON (W. K.) et CABRERA (N.), *Phil. Trans. Roy. Soc.*, Londres, 1951, **243**, 299.

FRANK (F. C.), Defects in Crystalline Solids, Conférence de la Physical Society à Bristol, 1954, 159.

FRIEDEL (J.), Les Dislocations, Gauthier-Villars, Paris, 1956 (en réimpression : édition revue et mise à jour).

GENTY (B.), GRAF (R.) et LENOIR (G.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1958 ; (*a*) **247**, 1731 ; (*b*) **247**, 2126.
GEVERS (R.), *Nature* (G.-B.), 1952, **171**, 171. *J. Chimie Physique*, Paris, 1953, **50**, 321.
GILMAN (J. J.), *J. Metals* (U. S. A.), 1956, **8**, Trans. A.I.M.E. 998.
GILMAN (J. J.) et JOHNSTON (W. G.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1956 *a*, **27**, 1018 ; DMPC, 1956 *b*, 116 ; *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958 *a*, **29**, 747 ; *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958 *b*, **29**, 877 ; *J. Appl. Phys.* (U. S. A.), 1959, **30**, 129.
GLOSSOP (Ann. B.) et PASHLEY (D. W.) *Proc. Roy. Soc.* A 1959, **250**, 132.
GRENALL (A.), *Nature* (G.-B.), 1958, **182**, 448.
GRIFFIN (L. J.), *Phil. Mag.*, 1950 (7), **41**, 196.

HALE (K. F.) et THOMAS (K.), Conférence de l'Institute of Physics, Londres, 1958.
HEDGES (J. N.) et MITCHELL (J. W.), *Phil. Mag.*, 1953 (7), **44**, 223.
HIRSCH (P. B.), HORNE (R. W.) et WHELAN (M. J.), DMPC, 1956 (*a*), 92 ; *Phil. Mag.*, 1956 *b* (8), **1**, 677 (avec BOLLMANN (W.)), *Proc. Roy. Soc.*, A 1957, **240**, 524.
HIRSCH (P. B.) et WHELAN (M. J.), *Phil. Mag.*, 1957 (7), **2**, 1303.
HIRSCH (P. B.), SILCOX (J.), SMALLMAN (R. E.) et WESTMACOTT (K. H.), *Phil. Mag.*, 1958 (8), **3**, 897.
HIRTH (J. B.) et VASSAMILLET (L.), *J. Appl. Physics*, 1958, **29**, 595.
HUEGEL (F. J.) et MICHAEL (A. B.), *Acta Met.*, 1957, **5**, 339.

JACQUET (P. A.), *Acta Met.*, 1954, **2**, 752.
JACQUET (P. A.), *Metall. Rev.*, 1956, **1**, 157.
JACQUET (P. A.), WEILL (A. R.) et CALVET (J.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1958, **247**, 1001.
JACQUET (P. A.) et MERCARELLI (E.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1959, **248**, 405.

KEAR (B. H.) et PRATT (P. L.), *Acta Met.*, 1958, **6**, 457.
KROUPA (F.), *Czechoslovak J. of Physics* (en anglais), 1958, **8**, 186.

LACOMBE (P.) et BEAUJARD (L.), Conference on Strength of Solids. Conférence de la Physical Society à Bristol, 1947.
LACOMBE (P.) et WYON (G.), Defects in Crystalline Solids, Conférence de la Physical Society à Bristol, 1954, 187.
LANG (A. R.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958, **29**, 597.
LOVELL (L. C.) et VOGEL (F. L.), *J. Appl. Physics*, 1956, **27**, 1413.
LOVELL (L. C.), WERNICK (J. H.) et BENSON (K. E.), *Acta Met.*, 1958, **6**, 716.
LOVELL (L. C.), *Acta Met.*, 1958, **6**, 775.
LOVELL (L. C.) et WERNICK (J. H.), *J. Appl. Physics*, 1959, **30**, 234.

MECKEL (B. B.) et SWALIN (R. A.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1959, **30**, 89.
MENTER (J. W.), *Proc. Roy. Soc.*, A. 1956, **236**, 119.
MENTER (J. W.), PASHLEY (D. W.) et BASSETT (G. A.), *Nature* (G.-B.), 1957, **179**, 752.
MENTER (J. W.), BASSETT (G. A.) et PASHLEY (D. W.), *Proc. Roy. Soc.*, A 1958, **246**, 345.
MITCHELL (J. W.), DMPC, 1956, 69.

MORAN (P. R.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958, **29**,1768.
MOTT (N. F.), *J. Iron Steel Inst.* (G.-B.), 1956, **183**, 233.

NEWKIRK (J. B.), *J. Appl. Physics*, 1958, **29**, 995.

OGAWA (S.), WATANABE (D.), WATANABE (H.) et KOMODA (T.), *Acta Crystall.*, 1958, **11**, 872.
OMAR (M.) et KENAWI (M.), *Phil. Mag.*, 1957 (8), **2**, 859.
OROWAN (E.), *Z. Physik*, 1934, **89**, 614, 635.

PASHLEY (D. W.), Conférence de l'Institute of Physics, Londres, 1958, voir GLOSSOP, 1959.
PEARSON (G. L.) et READ Jr. (W. T.), Defects in Crystalline Solids, Conférence de la ' Physical Society ' à Bristol, 1954, 143.
PFANN (W. G.) et VOGEL Jr. (F. L.), *Acta Met.*, 1957, **5**, 377.
POLANYI (M.), *Z. Physik*, 1934, **89**, 660.

READ (W. T.), Dislocations in Crystals, New York, Mc Graw-Hill, 1953.
REYNOLDS (D. C.) et GREENE (L. C.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958, **29**, 559.
ROBINSON (D. L.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958, **29**, 1635.
ROTH (W. L.) *Nature* (G.-B.), 1954, **173**, 385.

SAULNIER (A.) et MIRAUD (P.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1958, **247**, 2351.
SEITZ (F.), Advances in Physics (*Phil. Mag.*, suppl.), 1952, **1**, 43.
SERVIL (I. S.), *Phil. Mag.*, 1958 (8), **3**, 63.
SINES (G.), DMPC, 1956, 547.
SMALLMAN (R. E.), Conférence de l'Institute of Physics, Londres, 1958.
SUZUKI (H.), DMPC, 1956, 172.
SUZUKI (T.) et IMURA (T.), Defects in Crystalline Solids, 1954, 347.

TAOKA (T.) et SAKATA (S.), *Acta Met.*, 1957, **5**, 236.
TAYLOR (G. I.), *Proc. Roy. Soc.*, A 1934, **145**, 362.
THOMAS (G.) et WHELAN (M. J.), Conférence de l'Institute of Physics, Londres, 1958. *Phil. Mag.*, 1959.
TOMLINSON (née M. HEATHER MURPHY), *Phil. Mag.*, 1958, (8), **3**, 867.
TWEET (A. G.), *J. Appl. Physics* (U. S. A.), 1958, **29**, 1520

VENABLES (J. D.) et BROUDY (R. M.), voir BROUDY (R. M.).
VERMA (A. R.), Crystal Growth and Dislocations, Maxwell et Spring, Londres, 1954.
VOGEL Jr. (F. L.), PFANN (W. G.), COREY (H. E.) et THOMAS (E. E.), *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 489.
VOGEL Jr. (F. L.), *Acta Met.*, 1955, **3**, 245.
VOGEL Jr. (F. L.) et PFANN (W. G.), 1957, voir PFANN (W. G.).
VOTAVA (E.), *Z. Metall.*, 1956, **47**, 309.
VOTAVA (E.), BERGHEZAN (A.) et GILLETTE (R. H.), *Naturwiss.*, 1957, **44**, 372.

WATTS (H.), *Nature* (G.-B.), 1959, **183**, 314.
WEILL (A. R.), Communication à la Société française de Minéralogie et de Cristallographie, 1959.
WOLFF (Ursula E.), *Acta Met.*, 1958, **8**, 559.
WYON (G.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **247**, 458.

ZAPFFE (C. A.) et WORDEN (C. O.), *Acta Crystall.*, 1949, **2**, 377, 383, 386.

LETTRES A LA RÉDACTION

QUELQUES REMARQUES A PROPOS DES SYSTÈMES DIFFÉRENTIELS DE COINCIDENCES RAPIDES

Par M. MAITROT,
Institut de Physique Nucléaire,
Faculté des Sciences de Lyon.

Il peut sembler intéressant d'appliquer le principe des systèmes différentiels de coïncidences rapides [1], [2], à la sortie de deux sondes à scintillation utilisant des scintillateurs liquides (chargés ou non). La technique des coïncidences rapides est en effet très utilisée, soit pour éliminer le fond dû au photomultiplicateur (fond qui peut être très important quand le rendement en lumière du scintillateur est médiocre [3] ou quand l'énergie perdue dans celui-ci par les particules incidentes est faible), soit pour profiter au maximum du faible temps de décroissance du scintillateur.

1) Nous avons utilisé tout d'abord le système différentiel de Bay [1] monté avec des diodes OA 73, les détecteurs étant munis (a) de photomultiplicateurs 53 AVP suivis d'amplificateurs distribués (b) de photomultiplicateurs RCA 6810. Dans les deux cas nous n'avons utilisé que la partie centrale de la photocathode.

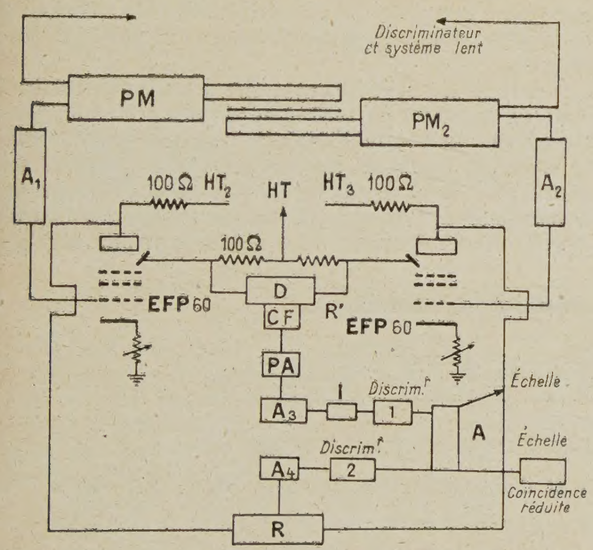


FIG. 1. — D : Système différentiel de Bay.
R : Système de Bell Graham et Petch.
I : Inverseur de phase.
A : Anticoïncidences.
A_1 A_2 ampli. Distribué.
A_3 Ampli. à grand grain.
PA. Préampli (Boucle de 3).

Le schéma de montage est donné figure 1 cependant, à la différence de Bay nous avons mis les impulsions en forme après les amplificateurs (a) ou aussi près que possible de l'anode du phototube (b) au moyen de deux tubes EFP 60 bloqués dont les tensions d'anode et de dynode sont convenablement découplées : on peut couper ensuite les impulsions par clipping.

La sortie du système différentiel de Bay est envoyée dans un cathode follower puis dans un ensemble pré-amplificateur-amplificateur à grand grain ; dans un déphaseur simple (on peut utiliser par exemple celui

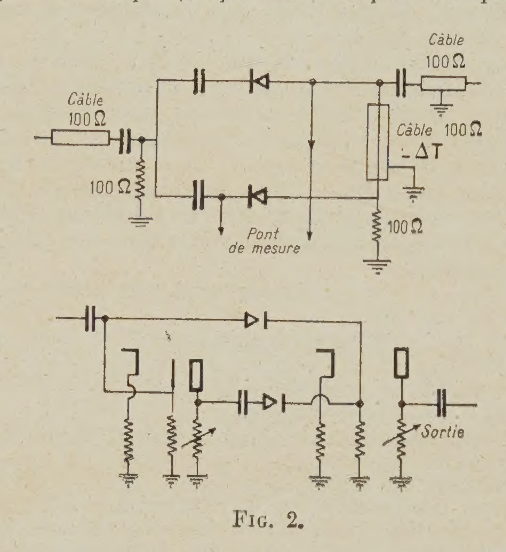


FIG. 2.

de la figure 2*b*), enfin dans un discriminateur D_1. Finalement les impulsions résultantes arrivent en anti-coïncidence en A avec la sortie amplifiée d'un système rapide plus simple (par exemple du type Bell Graham et Petch [4] monté sur les anodes des EFP 60. On mesure le temps de résolution en faisant varier le retard R'. En utilisant un seul compteur branché sur les deux voies, on obtient une courbe de taux de comptage en fonction du retard correcte, le « fonds » étant peu important. Mais le fonctionnement est beaucoup moins satisfaisant si on introduit deux compteurs différents, même dans le cas d'une source β^+ (de ^{22}Na par exemple pour laquelle le nombre de coïncidences vraies est relativement important), le nombre de coups enregistré à l'entrée du discriminateur D_1 sur la branche D pour un retard R' quelconque est important, ce qui empêche de diminuer beaucoup le seuil de D_1 pour abaisser le temps de résolution. Ce fond n'est dû que partiellement à l'amplificateur (PA.A_3).

2) Il semble préférable d'utiliser un système plus simple nécessitant un gain moins important. Pour une mise en forme de même durée et hauteur, le système de Bell Graham et Petch donne des impulsions de sortie dont l'amplitude est beaucoup plus grande. Cependant pour éviter les couplages parasites entre les deux tubes EFP 60 il est nécessaire, dans ce cas, d'intercaler des cathodes follower sur les sorties anode et dynode des tubes EFP 60. On utilise alors la même

mise en forme en R et D, le même circuit de coïncidences rapides sur les deux voies et le même système d'anticoïncidences que précédemment, il suffit de placer un faible retard en R'. La stabilité des tubes EFP 60 convenablement choisis est satisfaisante après un nombre suffisant d'heures de marche, et le système a d'ailleurs l'avantage de compenser, du moins dans une grande mesure, la variation de pente des deux tubes au cours du temps, la modification étant analogue sur les anodes et les dynodes.

Le temps de résolution peut alors être abaissé jusqu'à 0,4 ou 0,5 10^{-9} seconde avec une perte de comptage tolérable. Nous avons utilisé les deux systèmes (1) et (2) pour mesurer la période de Hf 181. Cf. Engelder et de Waard [5 et 6]. Cependant la précision limite obtenue n'est pas supérieure à celle donnée par ces auteurs.

En conclusion, il semble que, jusqu'à présent, les méthodes différentielles ne constituent pas une amélioration très sensible de la technique des coïncidences rapides utilisant des sondes à scintillation, à cause des fluctuations de temps de transit dues aux photomultiplicateurs eux-mêmes. Cependant leur intérêt doit augmenter considérablement dans un avenir rapproché avec la qualité de l'optique électronique des photomultiplicateurs.

Lettre reçue le 22 avril 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Bay, *Nucleonics*, 1956, **14**, n° 4, 56.
[2] Minton, *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 758.
[3] Cf. Liquid scintillation couting par Bell et Hayes, Pergamon Press, 1958, p. 274 et suivantes (la réponse spectrale du scintillateur liquide Ne 314 semble varier très notablement d'un échantillon à l'autre : un échantillon nous ayant été donné des résultats nettement moins mauvais que ceux signalés par Burch et Bird, *op. cit.*, p. 280, un autre des résultats encore plus médiocres).
[4] Bell Graham et Petch, *Canad. J. Physics*, 1952, **30**, 35.
[5] Engelder, *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 259.
[6] de Waard (H.), *Physica*, 1952, **18**, 1151.

TENTATIVE D'INTERPRÉTATION DES RAIES DE PHOTOLUMINESCENCE DE L'IODURE CUIVREUX AUX BASSES TEMPÉRATURES

Par S. Nikitine et R. Reiss,
Laboratoire de Spectroscopie et d'Optique du Corps Solide, Institut de Physique de Strasbourg.

De récentes expériences [1] ont montré que l'on observait, à la température de l'azote liquide, des raies d'émission de l'iodure cuivreux qui pouvaient être classées en deux catégories : 1° des raies de quasi résonance dont la longueur d'onde correspond à un angström près à celle des raies d'absorption ; 2° des raies dont la longueur d'onde ne correspond à celle d'aucune raie d'absorption.

Le spectre de photoluminescence débute, du côté des courtes longueurs d'onde, par une raie d'émission de résonance ($\lambda = 4\,051$ Å) correspondant à la raie intense du doublet de « raies ultimes » observées en absorption et attribuées à un spectre excitonique de première classe conformément à la théorie d'Elliott [2].

Lorsqu'on étudie les mêmes lames à la température de l'hélium liquide [3], le spectre de photoluminescence débute, du côté des courtes longueurs d'onde, par une raie d'émission de longueur d'onde 4 065 Å (*). Les diverses raies observées à cette température peuvent être classées en structures et sous-structures vibrationnelles.

La figure 1 donne une récapitulation graphique des diverses raies d'émission observées aux deux températures ainsi que celle des raies d'absorption observées avec diverses lames d'iodure cuivreux aux mêmes températures.

Le décalage des spectres entre les deux températures permet de suggérer la tentative d'interprétation suivante : Il est nécessaire d'admettre que par éclairement dans la bande continue, des excitons sont formés. Ces excitons polarisent le réseau en cédant de l'énergie et se placent sur des niveaux d'énergie inférieurs à celui de l'exciton non polarisé. La réémission par annihilation de ces états polarisés est possible, mais doit se faire avec une assez grande durée de vie. C'est ce que l'on observe aux très basses températures.

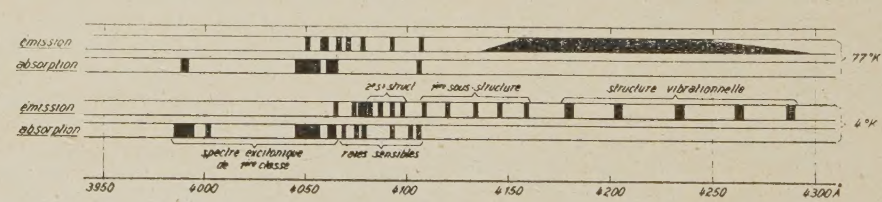


Fig. 1. — Récapitulation graphique des raies d'émission et d'absorption de CuI à 77 °K et à 4 °K.

A la température de l'azote liquide toutefois, il pourrait y avoir échange avec le cristal d'une énergie kT, où k est la constante de Boltzmann et T la température absolue. De ce fait, l'exciton piégé pourrait revenir au niveau de l'exciton non piégé observé par absorption et l'on observe alors une raie d'émission de résonance ($\lambda = 4\,051$ Å).

Les excitons piégés pourraient également être des molécules diexcitoniques.

Le schéma de la figure 2 illustre ce processus.

L'énergie kT correspondrait à un déplacement spectral de 54 cm^{-1} pour la température de l'azote liquide. Or le déplacement observé expérimentalement est de l'ordre de 80 cm^{-1}. Ceci impliquerait, si le processus

(*) Cette longueur d'onde coïncide sensiblement avec celle de la raie la moins intense du doublet de « raies ultimes ».

suggéré est valable, que l'on devrait observer à une température absolue de l'ordre de 115° la raie d'émission de résonance de longueur d'onde 4 051 Å avec

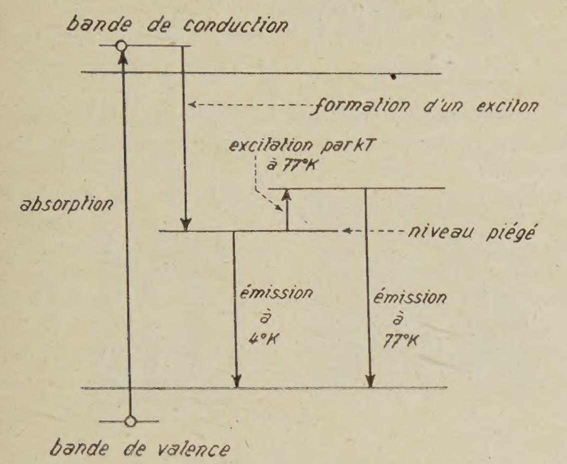


FIG. 2. — Processus de l'émission à 77 °K et à 4 °K.

une plus grande intensité pour cette température. Cette expérience n'a pas encore été faite et est actuellement à l'étude.

Lettre reçue le 4 mai 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] REISS (R.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 902.
[2] NIKITINE (S.), *J. Chim. Phys.*, 1958, **76**, 621. NIKITINE (S.), REISS (R.) et SIESKIND (M.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 3439.
[3] NIKITINE (S.) et REISS (R.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 1017. NIKITINE (S.) et REISS (R.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 2788.

INFLUENCE DE LA TEMPÉRATURE SUR LES PHOTOMULTIPLICATEURS

Par A. COCHE et G. LAUSTRIAT,
Laboratoire de Chimie Nucléaire,
Faculté des Sciences de Strasbourg.

Nous avons, dans un précédent article [1], étudié l'influence de la température sur la hauteur d'impulsion délivrée par différents photomultiplicateurs (PM), lorsqu'ils sont associés à un scintillateur liquide, et nous avons montré que la hauteur d'impulsion augmente lorsque la température diminue.

D'après les travaux de certains auteurs [2], [3], il semblait que cet effet dépendait de la longueur d'onde de la lumière incidente. Dans nos premiers essais, la longueur d'onde pouvait être modifiée par l'emploi de scintillateurs différents, mais seulement dans l'intervalle 3 600-4 300 Å, à l'intérieur duquel nous n'avions remarqué aucune influence. Aussi, pour compléter cette étude, avons-nous effectué quelques expériences en éclairant la photocathode par de la lumière dont la longueur d'onde était susceptible de varier dans de larges limites.

La méthode utilisée est celle de Morton pour la détermination du gain des PM : on mesure d'abord le courant de cathode correspondant à un flux lumineux dont le domaine spectral est défini grâce à un filtre interférentiel (isolant une bande de 150 Å à mi-hauteur), puis le courant d'anode, après affaiblissement du flux incident par un filtre neutre. Dans nos expériences, ces mesures sont effectuées à deux températures : + 20° et — 30 °C.

Le dispositif expérimental, formé de deux enceintes isolées, thermiquement, est voisin de celui décrit précédemment [1], l'enceinte supérieure ayant été modifiée de manière que la lumière émise par une lampe à ruban de tungstène tombe sur la photocathode après passage à travers les filtres.

Cette étude a porté sur 10 tubes : 3 Du Mont 6 292, 4 Radiotechnique 53 AVP et 3 RCA 6 342. Les résultats relatifs aux deux premiers types de tubes sont indiqués sur les figures 1 et 2 (¹).

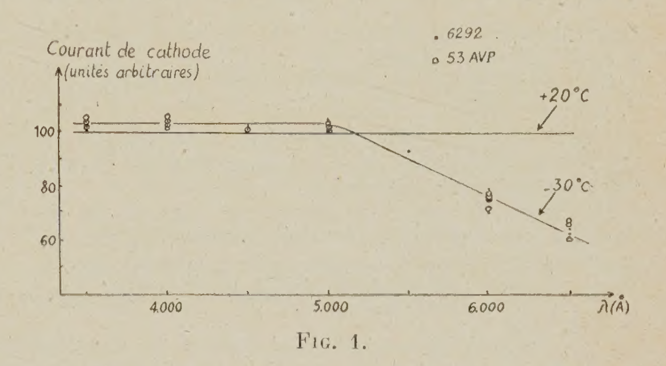


FIG. 1.

Sur la figure 1, on a porté les valeurs du courant de cathode des différents PM en fonction de la longueur d'onde λ de la lumière incidente (le courant à + 20 °C étant pris égal à 100 pour chaque longueur d'onde). On remarque que la température est pratiquement sans influence sur le courant de cathode tant que la longueur d'onde est inférieure à 5 000 Å environ ;

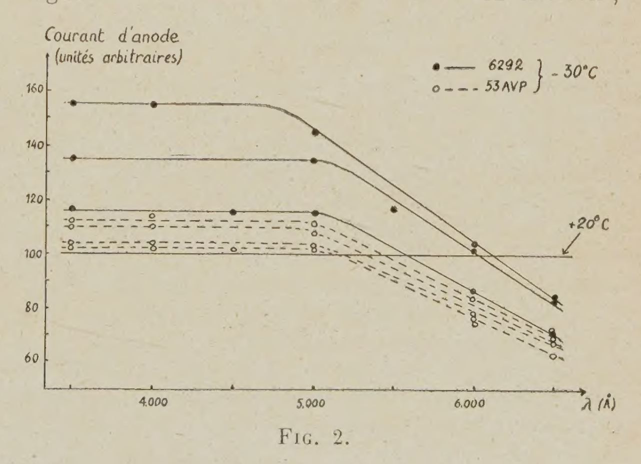


FIG. 2.

(¹) Nous avons constaté, avec les PM 6 342, le comportement particulier suivant : la différence de potentiel nécessaire pour obtenir le courant de saturation de la cellule cathode-première dynode est considérablement plus élevée qu'avec les autres tubes et l'effet de température au niveau de la cathode (coefficient positif) augmente progressivement du violet au rouge, tandis que les courbes de courant d'anode ont une allure identique à celles des autres tubes.

au delà de cette valeur, on observe une diminution du courant avec la température. Ce comportement, identique pour tous les PM et sans doute caractéristique de l'alliage $SbCs_3$ qui constitue les cathodes, se trouve en accord avec les indications de Meessen [2] et les observations de Schaetti [4].

Les courbes de la figure 2 — sur laquelle on a porté les valeurs du courant d'anode à — 30 °C (en prenant encore égal à 100 le courant à + 20 °C, pour chaque longueur d'onde) — présentent toutes, comme on pouvait s'y attendre, la même allure que celle de la figure 1, puisque des variations relatives de courant de cathode doivent entraîner des variations relatives identiques du courant d'anode. Ces courbes mettent en évidence un effet de température sur les dynodes (c'est-à-dire une variation du gain du PM), dont la valeur est donnée par le rapport $\frac{Ia - I_k}{I_k}$, où Ia et I_k représentent respectivement les courants d'anode et de cathode, avec la notation adoptée pour les figures 1 et 2.

Ce rapport a été trouvé indépendant de la longueur d'onde et toujours compris entre 0,10 et 1,0 %/°C (les tubes 6 292 présentant les valeurs les plus fortes tandis que les tubes 53 AVP ont les coefficients les plus faibles et les moins dispersés).

Les effets de température sur la cathode et les dynodes peuvent également être mis en évidence en modifiant le dispositif expérimental de manière que la photocathode émerge de quelques millimètres dans l'enceinte supérieure. On peut alors refroidir séparément (du moins approximativement, à cause du gradient de température inévitable), soit la cathode, soit la chaîne des dynodes, et l'on constate, si l'on éclaire avec une lumière rouge, soit une diminution (effet de cathode), soit une augmentation (effet de dynodes) du courant d'anode.

Ces expériences précisent les résultats précédemment obtenus, en montrant qu'un changement de la température du PM affecte à la fois la cathode (coefficient positif et variable au delà de 5 000 Å) et le gain (coefficient négatif et constant). Le sens de la variation globale (celle du courant d'anode) dépend alors de la longueur d'onde : il peut s'inverser au delà de 5 500 à 6 000 Å, lorsque l'effet de cathode l'emporte sur l'effet de dynodes.

Nous remercions M. J. Kurek qui a fait de nombreuses mesures au cours de ces expériences.

Lettre reçue le 25 mai 1959.

BIBLIOGRAPHIE

[1] LAUSTRIAT (G.) et COCHE (A.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, n° 12, 927.
[2] MEESSEN (A.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, n° 4, 437.
[3] KOECHLIN (Y.), Communication au Colloque International sur l'Électronique Nucléaire, Paris, septembre 1958.
[4] SCHAETTI (N.), *Acta Electronica*, 1956, **1**, n° 2, 25.

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. — Dépôt légal : 3e trim. 1959. — Imp. TAFFIN-LEFORT à Lille (France).